

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
 US Department of Commerce  
 United States Patent and Trademark  
 Office, PCT  
 2011 South Clark Place Room  
 CP2/5C24  
 Arlington, VA 22202  
 ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
 in its capacity as elected Office

<b>Date of mailing</b> (day/month/year) 06 November 2000 (06.11.00)	
<b>International application No.</b> PCT/JP00/02149	<b>Applicant's or agent's file reference</b> PEB211
<b>International filing date</b> (day/month/year) 03 April 2000 (03.04.00)	<b>Priority date</b> (day/month/year) 02 April 1999 (02.04.99)
<b>Applicant</b> SU, Qingquan et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:  
14 September 2000 (14.09.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was  
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).



PCT

## 国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
(PCT36条及びPCT規則70)

REC'D 04 MAY 2001

WIPO

PCT

出願人又は代理人 の書類記号 PEB211	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/02149	国際出願日 (日.月.年) 03.04.00	優先日 (日.月.年) 02.04.99
国際特許分類 (IPC) Int. Cl. C01B3/50, B01D53/14, C10K3/04, C10L3/00, C10J3/00, H01M8/06, H01M8/08, H01M8/10		
出願人 (氏名又は名称) 株式会社 荏原製作所		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 4 ページからなる。
- ☒ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で 2 ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
  - II ☐ 優先権
  - III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
  - IV ☐ 発明の単一性の欠如
  - V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
  - VI ☐ ある種の引用文献
  - VII ☐ 国際出願の不備
  - VIII 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理する。

国際予備審査報告を作成する。

1. 出願人又は代理人の署名

2. 出願人又は代理人の住所





## 1. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT 14条)の規定に基づく命令に  
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
 PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書 第 1-27 ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 ページ、 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 請求の範囲 第 1-18 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 項、 PCT 19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 19-21 項、 26.02.01 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 図面 第 1/13-13/13 ページ/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 ページ/図、 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 ページ、 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった

4. 補正により、下記の書類が削除された

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. この国際予備審査報告は、補正欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められ、  
 本報告書から補正が削除されたものとみなして作成した。PCT規則70.16(1)にいう補正を含む差し替え用紙は、  
 本報告書には添付しない。



## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)

請求の範囲

1-21

有

請求の範囲

無

進歩性(I S)

請求の範囲

有

請求の範囲

1-21

無

産業上の利用可能性(I A)

請求の範囲

1-21

有

請求の範囲

無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

文献1:US, 5457250, A, (Hoechst Aktiengesellschaft) 10. 10月. 1995(10. 10. 95)

文献2:US, 5604047, A, (Exxon Research and Engineering Company) 18. 2月. 1997  
(18. 02. 97)

文献3:JP, 59-75987, A, (月島機械株式会社外2名) 28. 4月. 1984(28. 04. 84)

文献4:JP, 3-208801, A, (三菱重工業株式会社) 12. 9月. 1991(12. 09. 91)

文献5:JP, 62-278769, A, (日本鋼管株式会社) 3. 12月. 1987(03. 12. 87)

文献6:JP, 4-65302, A, (電源開発株式会社外1名) 2. 3月. 1992(02. 03. 92)

文献7:JP, 60-35730, U, (三菱重工業株式会社) 12. 3月. 1985(12. 03. 85)

文献8:JP, 63-70669, U, (富士電機株式会社) 12. 5月. 1988(12. 05. 88)

(1) 請求の範囲1, 3, 10, 12, 19に記載された発明は、国際調査報告に引用された文献1により進歩性を有していない。

文献1には、プラスチック廃棄物(可燃物)を部分酸化によりガス化し、得られたガスを水またはアルカリ性薬剤の入った水により洗浄して固体やHC1等を除去し、更にシフト変換した後、化学的洗浄及び吸着剤を用いた圧力変動法によって、水素を得る旨が記載されている。

文献1には、前記吸着剤により一酸化炭素を除去する点は明記されていないが、圧力変動吸着法により一酸化炭素を除去する方法は良く知られており、高純度水素を得るために、前記圧力変動吸着法により一酸化炭素も吸着除去することは当業者が容易になし得ることである。

(2) 請求の範囲1, 3, 7, 9, 10, 12, 16, 18-20に記載された発明は、国際調査報告に引用された文献2, 3により進歩性を有していない。

文献3には、廃棄物を熱分解によりガス化し、得られたガスを水又はアルカリ性の苛性液により洗浄して塩化水素、硫化水素等を除去し、更にシフト変換して水素含有ガスを得る旨が記載され、該ガスが一酸化炭素を含有し、水素に富むガスであることは当業者にとって自明である。

一方、燃料電池用の水素含有ガス中に微量の一酸化炭素が含まれると電池性能を低下させることは周知であり、文献2には、一酸化炭素を含有し、水素に富んだガスから一酸化炭素を吸着除去し、実質的に一酸化炭素のない水素に富んだガス流、より詳しくは燃料電池に適したガスを得る旨が記載されている。

また、廃棄物を有効利用すると共に、安価な燃料源として廃棄物から燃料電池に適





補充欄 (いずれかの欄の大きさが足りない場合に使用すること)

第 V 欄の続き

(3) 請求の範囲1-3、7、9、10-12、16、18-20に記載された発明は、国際調査報告に引用された文献1、3、4により進歩性を有していない。

(1)、(2)記載のように、文献1、3には、廃棄物をガス化し、洗浄、シフト変性し、水素含有ガスを得る旨が記載されている。

一方、文献4には、合成ガスをシフト変換するのみでは、燃料電池用としては、一酸化炭素が十分に除去されておらず、シフト変換後に一酸化炭素を酸化除去する方法が有効であるが、装置の大型化を防ぐため、現実的には酸化除去後も一酸化炭素が残留する旨が記載され、一酸化炭素を十分に除去するために有効な方法として、一酸化炭素、二酸化炭素、水素を含むガスをシフト変換した後、一酸化炭素を酸化除去し、更に一酸化炭素を吸着除去する実施例が記載されている。

また、廃棄物を有効利用すると共に、安価な燃料源として廃棄物から燃料電池に適した水素ガスを得ようとするのは当業者にとって良く知られた課題である。

してみれば、文献1、3記載の廃棄物を原料として得られたガスを燃料電池用として使用するために、文献4記載の技術と同様にシフト変換後に、一酸化炭素を酸化除去し、更に一酸化炭素を吸着除去することは当業者が容易に想到し得ることである。

(4) 請求の範囲1-5、7、9-14、16、18-20に記載された発明は、国際調査報告に引用された文献1-6により進歩性を有していない。

一酸化炭素、二酸化炭素、及び水素を含有するガスから、一酸化炭素と二酸化炭素等を除去し高純度の水素を得る方法として、文献5、6記載のような下記a、bの方法が良く知られている。

a. シフト変換(変性)後に、アルカリにより二酸化炭素を吸収除去し、更に吸着法によって、一酸化炭素、二酸化炭素等の水素以外のガスを吸着除去し、高純度水素ガスを得る方法

b. シフト変換後に二酸化炭素を吸着除去し、更に一酸化炭素を吸着除去する方法

してみれば、文献1、3記載の発明において、洗浄後の一酸化炭素、二酸化炭素、及び水素を含有するガスをシフト変換した後、上記a、b記載の方法を採用して、高純度の水素を得ることは当業者が容易に想到し得ることであり、また、固体高分子型等の燃料電池用に使用する際、水素ガスの純度が高いほど適していることが知られているので、得られた高純度水素を燃料電池用水素として使用することに格別の困難性は認められない。

(5) 請求の範囲6、8、15、17、21に記載された発明は、国際調査報告に引用された文献1-7及び新たに引用する文献8により進歩性を有していない。

文献8には、水素含有ガスを製造して燃料電池に供給する際、製造したガスを水素貯蔵合金に貯蔵し、水素貯蔵合金から燃料電池に精製水素を供給することが記載されている。また、文献7記載のように、水素貯蔵合金によって、窒素、アルゴン等の不純物も除去できることが良く知られている。

してみれば、文献1-6記載の技術に基づいて製造した高純度水素ガスを、より高純度にして燃料電池に供給するために、文献8記載の技術と同様に水素貯蔵合金に貯蔵して、窒素、アルゴン等の不純物をも除去することは当業者が容易になし得ることである。また、燃料電池の廃熱を水素貯蔵合金の昇温に利用することは周知技術であり(例えば、JP、5-29014、A(富士電機株式会社) 5/2月、1993(05.02.93))、該周知技術を採用することに格別の困難性は認められない。



15. 前記一酸化炭素吸着塔の後段に、前記生成ガス中の窒素とアルゴンを分離すると共に、水素ガスを昇圧する水素吸蔵合金を充填した合金収納容器を設けたことを特徴とする請求項10乃至14のいずれか1項に記載の可燃物のガス化による水素製造装置。

16. 請求項10乃至15のいずれか1項に記載の装置で製造した水素ガスを燃料電池に供給して発電することを特徴とする可燃物のガス化による発電システム。

17. 前記燃料電池の冷却で回収される排熱を、請求項15に記載の水素吸蔵合金による水素放出時の加熱熱源として用いることを特徴とする請求項16に記載の可燃物のガス化による発電システム。

18. 前記燃料電池は、固体高分子型燃料電池又は燐酸型燃料電池であることを特徴とする請求項16又は17に記載の可燃物のガス化による発電システム。

19. (追加) 可燃性廃棄物や石炭等の可燃物をガス化させるガス化工程と、該ガス化工程にて生成したガスを精製して水素を製造するガス処理工程からなる水素製造方法であって、

前記ガス処理工程は、前記ガス化工程で得られた生成ガスを水またはアルカリ性溶液と接触させてガス中の煤塵と塩化水素や硫化水素等の微

雖す一酸化炭素吸着工程を含むことを特徴とする可燃物のガス化に



よる水素製造方法。

20. (追加) 可燃性廃棄物や石炭等の可燃物をガス化させるガス化工程と、該ガス化工程にて生成したガスを精製して水素を製造するガス処理工程とからなり、該ガス化工程によって得られる水素を燃料電池に供給する方法であって、

前記ガス処理工程は、前記ガス化工程で得られた生成ガスを水またはアルカリ性溶液と接触させてガス中の煤塵と塩化水素や硫化水素等の微量の酸性ガスとを吸収除去するガス洗浄工程と、該ガス洗浄工程にて洗浄された生成ガスを一酸化炭素吸着剤と接触させて一酸化炭素を吸着分離する一酸化炭素吸着工程とを含むことを特徴とする可燃物のガス化による水素製造供給方法。

21. (追加) 可燃物をガス化させるガス化工程と、該ガス化工程にて生成したガスを精製して水素を製造するガス処理工程からなる水素製造方法であって、

前記ガス処理工程は、前記ガス化工程で得られた生成ガスを水またはアルカリ性溶液と接触させてガス中の煤塵と塩化水素や硫化水素等の微量の酸性ガスとを吸収除去するガス洗浄工程と、該ガス洗浄工程にて洗浄された生成ガスをアルカリ性吸収液と接触させて前記生成ガス中の二酸化炭素を吸収分離する二酸化炭素化学吸収工程と、該二酸化炭素化学吸収工程の後に生成ガスを一酸化炭素吸着剤と接触させて一酸化炭素を吸着分離する一酸化炭素吸着工程と、該一酸化炭素吸着工程の後に生成



**Translation**

**PATENT COOPERATION TREATY**

**PCT**

**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference <b>PEB211</b>	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/ IPEA 416)	
International application No. <b>PCT/JP00/02149</b>	International filing date ( <i>day month year</i> ) <b>03 April 2000 (03.04.00)</b>	Priority date ( <i>day month year</i> ) <b>02 April 1999 (02.04.99)</b>
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC <b>C01B 3/50, B01D 53/14, C10K 3/04, C10L 3/00, C10J 3/00, H01M 8/06, 8/08, 8/10</b>		
Applicant <b>EBARA CORPORATION</b>		

1	This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.
2	<p>This REPORT consists of a total of <u>7</u> sheets, including this cover sheet</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and or drawings which have been amended and are the basis for this report and or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>2</u> sheets.</p>
3	<p>This report contains indications relating to the following items</p> <p>I <input type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability, citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>

Date of submission of the demand	Date of completion of this report
----------------------------------	-----------------------------------





## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT JP00 02149

## 1. Basis of the report

1. With regard to the **elements** of the international application \*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
pages 1-27, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the claims:  
pages 1-18, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages 19-21, filed with the letter of 26 February 2001 (26.02.2001)
- ☐ the drawings:  
pages 1 13-13 13, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.  
These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and or 55.3).

3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing.

- ☐ contained in the international application in written form
- ☐ filed together with the international application in computer readable form
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claim. Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, page(s) \_\_\_\_\_



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

IPC Class. No.

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability: citations and explanations supporting such statement

### 1 Statement

Novelty (N)	Claims	1-21	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-21	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-21	YES
	Claims		NO

### 2 Citations and explanations

- Document 1: US, 5457250, A (Hoechst AG), 10 October 1995 (10.10.95).
- Document 2: US, 5604047, A (Exxon Research and Engineering Co.), 18 February 1997 (18.02.97).
- Document 3: JP, 59-75987, A (Tsukishima Kikai Co., Ltd. et al.), 28 April 1984 (28.04.84).
- Document 4: JP, 3-208801, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 12 September 1991 (12.09.91).
- Document 5: JP, 62-278769, A (NKK Corp.), 3 December 1987 (03.12.87).
- Document 6: JP, 4-11001, A (Electric Power Development Co., Ltd. et al.), 2 March 1992 (02.03.92).
- Document 7: JP, 61-35730, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 11 March 1987 (11.03.87).
- Document 8: JP, 57-10000, A (Fujitsu Ltd.), 11 May 1982 (11.05.82).

1. The inventions described in Claims 1, 3, 10, 11, and 12 are novel and involve an inventive step.

2. The inventions described in Claims 1, 3, 10, 11, and 12 are industrially applicable.



after shift conversion, a pressure fluctuation method employing chemical purification and adsorption agents is used to obtain hydrogen.

Document 1 does not disclose the removal of carbon monoxide using the aforementioned adsorption agent. However, carbon monoxide removal using a pressure fluctuation adsorption method is a well-known technique, and a person skilled in the art could easily conceive of using the aforementioned pressure fluctuation adsorption method for adsorption and removal of carbon monoxide in order to obtain highly pure hydrogen.

(2) The inventions described in Claims 1, 3, 7, 9, 10, 12, 16, and 18 to 20 do not involve an inventive step in the light of Documents 2 and 3 cited in the international search report.

Document 3 discloses a process wherein wastes are gasified using thermal decomposition, substances such as hydrogen chloride and hydrogen sulfide are removed from the resulting gas by washing with water or an alkaline condensate, and after shift conversion, a gas containing hydrogen is obtained. It would be obvious to a person skilled in the art that the gas thereby obtained contains carbon monoxide and is rich in hydrogen.

Meanwhile, it is well known that traces of carbon monoxide in a fuel cell gas deteriorate fuel cell performance. Document 1 discloses a process wherein carbon monoxide is adsorbed and removed from gas rich in hydrogen but containing carbon monoxide by means of a pressure fluctuation adsorption method with an adsorption agent.



familiar issue for a person skilled in the art.

A person skilled in the art could therefore easily conceive of using adsorption such as the feature disclosed in Document 2 to remove carbon monoxide from the gas rich in hydrogen and containing carbon monoxide and which is obtained from wastes as raw material in order to obtain a gas suitable for use in a fuel cell.

(3) The inventions described in Claims 1 to 3, 7, 9, 10 to 13, 16, and 18 to 20 do not involve an inventive step in the light of Documents 1, 3, and 4 cited in the international search report.

As explained in sections (1) and (2) above, Documents 1 and 3 disclose gasification, washing, and shift conversion of wastes to obtain a gas containing hydrogen.

Meanwhile, Document 4 indicates that simply shift converting a synthesized gas does not remove sufficient carbon monoxide for fuel cell use, and that oxidation to remove carbon monoxide after shift conversion can be effective. However, in order to prevent the device from becoming too large, some carbon monoxide residues are still present after oxidation removal. Document 4 discloses an example wherein a gas containing carbon monoxide, carbon dioxide, and hydrogen is shift converted, after which carbon monoxide is removed using oxidation, and further carbon monoxide is removed using adsorption as an effective method for removing sufficient carbon monoxide.

Moreover, it should be noted that the waste which

is used in the art is not limited to the above.





in Document 4, oxidation to remove carbon monoxide after shift conversion, followed by adsorption to remove further carbon monoxide in order to use a gas obtained from wastes as raw material as disclosed in Documents 1 and 3 in a fuel cell.

(4) The inventions described in Claims 1 to 3, 7, 9 to 14, 16, and 18 to 23 do not involve an inventive step in the light of Documents 1 to 6 cited in the international search report.

Methods a) and b) below, as disclosed in Documents 5 and 6, are well known methods for removing carbon monoxide, carbon dioxide, and other substances from a gas containing carbon monoxide, carbon dioxide, and hydrogen to obtain highly pure hydrogen.

- a) a method for obtaining highly pure hydrogen wherein after shift conversion (modification), carbon dioxide is removed by absorption with alkali, then adsorption is used to further remove gases other than hydrogen such as carbon monoxide and carbon dioxide
- b) a method wherein after shift conversion, carbon dioxide is removed using adsorption, then adsorption is used to further remove carbon monoxide

A person skilled in the art could easily conceive of obtaining highly pure hydrogen by implementing method a) or b) above after shift conversion of a gas containing carbon monoxide, carbon dioxide, and hydrogen to obtain



5 The inventions described in Claims 6, 8, 15, 17, and 11 do not involve an inventive step in the light of documents 1 to 7 cited in the international search report and newly cited Document 8.

Document 8 discloses, in the preparation of a gas containing hydrogen and supply to a fuel cell thereof, the storing of a prepared gas in hydrogen-absorbing alloys and supply of refined hydrogen from the hydrogen-absorbing alloys to a fuel cell. In addition, removal of impurities such as nitrogen and argon by using hydrogen-absorbing alloys, such as disclosed in Document 1, is well known.

Based on the features disclosed in Documents 1 to 6, a person skilled in the art could therefore easily conceive of also removing impurities such as nitrogen and argon by storing a prepared highly pure hydrogen gas in hydrogen-absorbing alloys identically to the feature disclosed in Document 8 in order to supply the highest purity of gas to a fuel cell. Furthermore, use of fuel cell waste heat to heat the hydrogen-absorbing alloys is a well-known feature in the art as in JP, 5-19004, A (Fujitsu Electric Co., Ltd., 5 February 1993 (05.02.93)), and application of said feature would not be difficult.



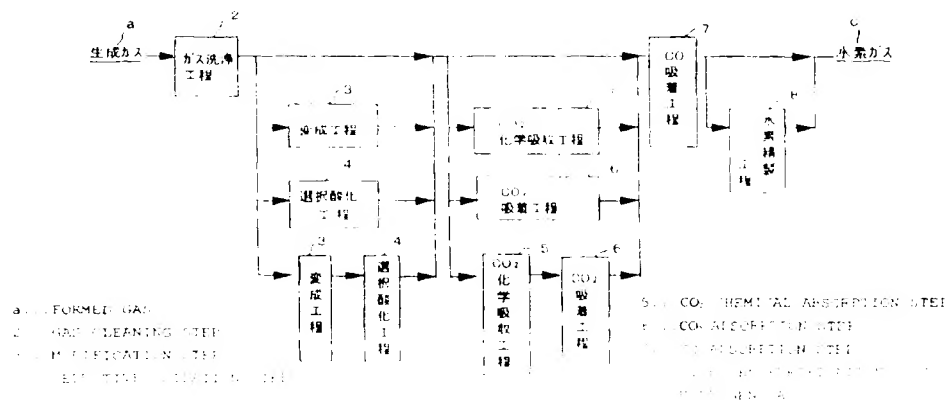
PCT

特許協力条約に基づいて公開された国際出願

<p>(51) 国際特許分類7 C01B 3/50, B01D 53/14, C10K 3/04, C10L 3/00, C10J 3/00, H01M 8/06, 8/08, 8/10</p>	<p>A1</p>	<p>(11) 国際公開番号 WO00/59825</p> <p>(43) 国際公開日 2000年10月12日(12.10.00)</p>
<p>(21) 国際出願番号 PCT JP00/02149</p> <p>(22) 国際出願日 2000年4月3日(03.04.00)</p> <p>(30) 優先権データ 特願平11-96565 1999年4月2日(02.04.99)</p> <p>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国において) 株式会社 荏原製作所(EBARA CORPORATION)[JP/JP] 〒144-8510 東京都大田区羽田旭町11番1号 Tokyo, (JP)</p> <p>(72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ) 蘇 晟泉(SU, Qingquan)[CN/JP] 木下和久(KINOSHITA, Kazuo)[JP/JP] 大下孝裕(OSHITA, Takahiro)[JP/JP] 三好敬久(MIYOSHI, Norihisa)[JP/JP] 成瀬克利(NARUSE, Katsutoshi)[JP/JP] 〒144-8510 東京都大田区羽田旭町11番1号 株式会社 荏原製作所内 Tokyo, (JP)</p> <p>(74) 代理人 渡邊 勇, 外(WATANABE, Isamu et al.) 〒160-0023 東京都新宿区西新宿7丁目5番8号 GOWA西新宿4階 Tokyo, (JP)</p>	<p>(81) 指定国 AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EL, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI特許 (BF, BJ, CI, CG, CL, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NL, SN, TD, TG), ARIPO特許 (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), コーカサス特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM)</p> <p>添付公開書類 国際調査報告書</p>	

(54)Title: METHOD AND APPARATUS FOR PRODUCTION OF HYDROGEN BY GASIFICATION OF COMBUSTIBLE MATERIAL

(54)発明の名称 可燃物のガス化による水素製造方法及び装置



本発明は、可燃物のもつ化学エネルギーを水素ガスの形で回収する技術、さらには高効率で電気エネルギーに変換する、エネルギー変換技術に関するものであり、可燃物（a）をガス化させるガス化工程（1）と、ガス化工程（1）にて生成したガス（b）を精製して水素を製造するガス処理工程（1a）からなる水素製造方法であって、ガス処理工程（1a）は、ガス化工程（1）で得られた生成ガス（b）を水またはアルカリ性溶液と接触させてガス中の煤塵と塩化水素や硫化水素等の微量の酸性ガスとを吸収除去するガス洗浄工程（2）と、ガス洗浄工程（2）にて洗浄された生成ガス（b）を一酸化炭素吸着剤と接触させて一酸化炭素を吸着分離する一酸化炭素吸着工程（7）とを含む。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SE	スウェーデン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SG	シンガポール
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリランカ	SI	スロベニア
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SK	スロバキア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SL	シエラレオネ
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SN	セネガル
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BB	バハマ	GD	グアドループ	MA	モロッコ	TD	チャド
BE	ベルギー	GE	ジョージア	MC	モナコ	TG	トーゴ
BF	ブルキナファソ	GH	ガーナ	MD	モルドバ	TJ	タジキスタン
BG	ブルガリア	GM	ギambia	MG	マダガスカル	TM	トルクメニスタン
BJ	ベナン	GN	ギニア	MK	マケドニア	TR	トルコ
BR	ブラジル	GR	ギリシャ		共和国	TT	トリニダード・トバゴ
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサウ	ML	マリ	TT	トリニダード・トバゴ
CA	カナダ	HR	クロアチア	MR	モーリタニア	UG	ウガンダ
CC	中東	HU	ハンガリー	MN	モンゴル	US	米国
CF	中央アフリカ	ID	インドネシア	MX	メキシコ	UZ	ウズベキスタン
CG	コンゴ	IE	アイルランド	MY	マレーシア	VN	ベトナム
CH	スイス	IL	イスラエル	NE	ニジェール	YU	ユーゴスラヴィア
CI	コート・ジボワール	IN	インド	NL	オランダ	ZA	南アフリカ共和国
CM	カメルーン	IT	イタリア	NO	ノルウェー	ZW	ジンバブエ
CO	コロンビア	JP	日本	NZ	ニュージーランド		
CR	コスタリカ	KE	ケニア	PL	ポーランド		
CU	キューバ	KG	キルギスタン	PT	ポルトガル		
CZ	チェコ	KP	北朝鮮	RO	ルーマニア		
DE	ドイツ	KR	韓国				
DK	デンマーク						

## 明 細 書

## 可燃物のガス化による水素製造方法及び装置

## 技術分野

本発明は、可燃物のもつ化学エネルギーを水素ガスの形で回収する技術、さらには高効率で電気エネルギーに変換する、エネルギー変換技術に係り、特に可燃性廃棄物や石炭等の可燃物をガス化し、生成ガスから水素ガスを製造するシステム、さらには製造した水素ガスを燃料電池に供給して発電する発電システムに関するものである。ここで、可燃性廃棄物には都市ゴミ、固形化燃料、スラリー化燃料、古紙、廃プラスチック、廃FRP、バイオマス廃棄物、自動車廃棄物、廃木材等の産業廃棄物、低品位石炭、廃油等が含まれる。

## 背景技術

近年、環境保護の意識が高まる中、可燃性廃棄物をエネルギー源として発電を行なう発電システムに関する様々な試みがなされている。その試みの一つとして、可燃物を加圧下でガス化し、得られた生成ガスでガスタービンを駆動しつつ、ガスタービン排ガスから排熱ボイラで熱回収して蒸気タービンを駆動し、ガスタービンと蒸気タービンの併用で複合サイクル発電を行って高効率発電を達成しようとする複合サイクル発電システムがある。

しかしながら、上述の複合サイクル発電システムは、低カロリーの高

汚染物質を発生し、環境負荷を増大させるおそれがある。

一方、水素のもつ化学エネルギーを直接に電気エネルギーに変換する発電システムであり、効率がよく環境負荷が少ない燃料電池技術が開発されてきている。ところで、このような発電技術を生かすためには高品質の水素ガスの製造システムの開発及び水素ガスステーション等の水素に関連するインフラストラクチャー整備が不可欠である。とりわけ、燃料電池自動車や家庭発電システムに最適の固体高分子型燃料電池には硫化水素や一酸化炭素等の被毒ガス成分をほとんど含まない高濃度の水素ガスを供給する必要があるが、改質が比較的容易である天然ガスとメタノールを水素の原料として用いているのが現状である。

#### 発明の開示

上述の事情に鑑み、本発明は、固形廃棄物焼却施設を水素ガスステーションあるいは環境を汚さない発電所に変えるべく、可燃物をガス化して生成したガスから燃料電池、とりわけ固体高分子型燃料電池に適した水素ガスを製造するシステム、さらには製造した水素ガスを燃料電池に供給し高効率でしかも環境負荷の少ない非焼却発電システムを提供することを課題とする。

前記課題を解決すべく本発明者らは鋭意研究を重ねた結果、下記の知見を見出して、可燃物のガス化によって生成した低品質ガスから燃料電池発電に適した高品質の水素ガスを効率よく製造する水素製造システム（図1に示すシステム）と、該製造水素ガスを燃料とする燃料電池発電システム（図2に示すシステム）を提供する本発明の完成に至った。即ち、本発明は以下（1）～（3）を基本とするものである。

（1）各々の不純物ガスをその分離特性によってグループ分けし、それぞれの分離特性と濃度範囲に応じて最適の分離技術を用いること。

（2）安価でエネルギー効率がよい送風機（ブロワ）又は単段型圧縮機



で達成可能な常圧～4気圧程度、最大で7気圧以下の比較的低圧条件においてガス処理を行うこと。

(3) 電力を消費することなくガス中のN<sub>2</sub>とArガスを分離すると共に水素ガスを昇圧する目的で水素吸蔵合金による水素精製工程を設け、水素吸蔵合金の水素放出時の加熱熱源として、燃料電池の排熱又はガス化工程で発生する熱エネルギーを利用すること。

可燃物のガス化によって得られる生成ガスは可燃物の種類によって異なるが、一般に燃料ガス成分として水素と一酸化炭素がそれぞれ数パーセントから数十パーセント、主な非燃料ガス成分として二酸化炭素、窒素、アルゴン及び水蒸気がそれぞれ数パーセントから数十パーセント含まれており、また、微量の酸性ガス成分として硫化水素や塩化水素などが数ppmから数千ppmの濃度範囲において含まれている。

ところが、燃料電池に供給する水素ガスとして、高い水素濃度は勿論のこと、できるだけ低い一酸化炭素濃度が要求され、とりわけ固体高分子型燃料電池の場合には、一酸化炭素を100ppm以下、好ましくは10ppm以下にする必要がある。また、酸性ガス、特に硫化水素と塩化水素は燃料電池の電極触媒の他に、一次工程の各種ガス吸収剤、吸着剤及び各種触媒を被毒するので、1ppm以下、好ましくは0.1ppm以下に取除くことが必要である。また、水素濃度を高めるために二酸化炭素、窒素及びアルゴンを分離することが必要である。さらに、水素吸蔵合金による水素生成工程を設ける場合には、二酸化炭素と水蒸気が水素吸蔵合金を被毒するので、それぞれを100ppm以下、好ましくは10ppm以下に上げるのが望ましい。

分離除去する必要がある。また、場合によっては、水素濃度を高めるために、

費が大きい上、水素の回収率が低い問題がある。本発明においては、水素以外の不純物ガスを分離特性によって、酸性ガス、一酸化炭素、二酸化炭素と水蒸気、そして窒素とアルゴンの4つのグループに分け、それぞれの分離特性と濃度範囲に応じて最適の分離技術を用いる。

硫化水素や塩化水素等の酸性ガスに対しては、洗浄工程を設けて洗浄水への溶解及び化学反応により洗浄除去する。

一酸化炭素に対しては、生成ガス中のCO濃度が5000ppm以下、条件によっては10%以上においては吸着負荷が比較的小さいことから、CO吸着工程のみを設けて吸着分離することができる。該吸着工程でCO以外のガス、例えば窒素やアルゴンを吸着するとCO吸着能力が低下するので、COに対して選択吸着性を有する吸着剤を用いる。また、CO濃度が5000ppm以上の場合、CO吸着工程の吸着負荷を軽減する目的で、CO吸着工程の前段にCOの選択酸化工程を設けることもできる。また、CO濃度が3%以上の場合、CO吸着工程の前段に選択酸化工程が設けてある場合には、選択酸化工程の前段に変成工程を設けることもできる。なお、本発明においては、変成工程を設けてある実施形態においてはCO吸着工程で脱着により回収されたCOを洗浄工程に返送して回収し、また、変成工程を設けていない実施形態においては前記CO吸着工程で回収されたCOをガス化工程に返送して処理する。

二酸化炭素及び水蒸気に対しては二酸化炭素化学吸収工程を設け、アルカリ吸収液によって二酸化炭素を化学吸収し、水蒸気を吸収温度にて凝縮除去する。CO<sub>2</sub>ガスの分離法として膜分離法、吸着法及び化学吸収法などがあるが、本発明においては、ガス化工程又は燃料電池発電工程で大量に発生する排熱が利用できること、常圧～4気圧程度、最大で7気圧の低圧条件下で吸収操作ができること、水素の回収率が極めて高いこと、硫化水素や塩化水素等の酸性ガスがさらに吸収除去できること、

そして分離回収されるCO<sub>2</sub>ガスが高純度のため高い商品価値を有することから、二酸化炭素化学吸収法を用いるのが好ましい。また、水素吸蔵合金による水素精製工程を設ける場合には二酸化炭素と水蒸気による水素吸蔵合金の被毒を防止するために、化学吸着工程の後段にさらに圧力スイング吸着(P S A)法による二酸化炭素吸着工程を設けて二酸化炭素及び水蒸気を100ppm以下、好ましくは10ppm以下に吸着除去する。また、化学吸収工程を設けずに、CO<sub>2</sub>をCO<sub>2</sub>吸着工程だけで分離することもできる。本発明におけるこの実施形態は水素の回収率が60～80%と低く、また回収されるCO<sub>2</sub>ガスの純度が低いため利用できない欠点がある反面、工程が簡潔になる利点がある。また、化学吸収工程が前段に設けてある場合にはCO<sub>2</sub>吸着工程の吸着負荷が非常に小さいので、CO<sub>2</sub>吸着工程と次工程のCO<sub>2</sub>吸着工程を、それぞれの吸着剤を同一の吸着塔に充填することによって両工程を一体化することもできる。

窒素とアルゴンに対しては、水素吸蔵合金の水素精製機能を利用した水素精製工程を設ける。N<sub>2</sub>とArが非活性ガスであるため、吸着法または化学吸収法によって水素からこれらのガスを分離する場合、エネルギー効率が極めて低い。水素吸蔵合金による分離法は水素のほうを選択吸蔵するので、吸着法及び吸収法に比べてエネルギー効率が高く、同時に水素の昇圧かできる利点を併せ持っている。精製水素ガスを燃料電池発電の燃料ガスとして用いる場合、電池スタックの動作範囲内において水素圧力が高いほど発電効率が高くなる。

従来では、ガスの分離操作には8気圧あるいはそれ以上の高い圧力が用いられることが多い。しかし、可燃物のガス化によって生成するガス

(副産物)が必要であり、また、エネルギー消費が大きいという問題がある。本発明は、水素供給

下する。本発明においては、前述のようにガスをグループ分けして分離除去するので、安価でエネルギー効率が高い送風機（ブロワ）又は単段型圧縮機で達成可能な常圧～4気圧程度、最大で7気圧以下の低圧条件においてガス処理を行うことができる。

可燃物のガス化工程において、大量の熱エネルギーを発生し、該熱エネルギーを有効に利用することが重要である。また、燃料電池発電を行う時に、燃料ガスのもつ化学エネルギーを電気エネルギーに変換すると共に、電気エネルギーとほぼ同じ量の熱エネルギーに変換し、該熱エネルギーが電池の冷却排熱として回収される。しかし、燐酸型燃料電池、とりわけ固体高分子型燃料電池の場合は、電池作動温度が低いために回収される排熱が70～80℃程度の低位排熱であり、該排熱をいかに有効利用するかが、発電システムの総合エネルギー効率を向上させる上で極めて重要である。

本発明においては、電力を消費することなくガス中のN<sub>2</sub>とArガスを分離すると共に水素ガスを昇圧する目的で、水素吸蔵合金による水素精製工程を設け、該工程の水素吸蔵合金の水素放出時の加熱熱源として、燃料電池発電工程を設ける実施形態においては前記燃料電池排熱を利用し、燃料電池を設けない実施形態においてはガス化工程にて発生した熱エネルギーを利用する。

本発明はかくして、水素製造システム及び燃料電池発電システムのエネルギー効率を高め、経済性を改善する。

以下、各工程について詳しく説明する。

#### 1) ガス化工程

本発明のガス化工程には、低温ガス化炉を用いた1段ガス化工程と、低温ガス化炉と高温ガス化炉とを用いた2段ガス化工程とがある。

1段ガス化工程においては、廃棄物からなる可燃物は流動層ガス化炉

である低温ガス化炉に供給され、400℃から1000℃の温度域で熱分解を受け、水素と一酸化炭素、及び若干の炭化水素を含んだガスを生成する。この場合、投入時の温度から400℃～1000℃への昇温は、可燃物を部分燃焼させることにより行う。また可燃物中に混入した不燃物は、ガス化炉から排出される。ガス化炉には流動床炉の他、ロータリーキルン、ストーカ炉等を用いても良いが、都市ゴミのように不定形で、かつ不燃物を含む可燃物を原料とする場合には、流動床炉の方が望ましい。なぜなら流動床炉であれば炉から排出されるべき不燃物に未燃物が付着しないので、不燃物の処理、処分における問題が少ないからである。また流動床炉を採用する場合の層温は、熱分解を阻害しない範囲で低い方、具体的には400℃以上600℃以下で運転する方が、不燃物が酸化されないので再利用し易く、好ましい。

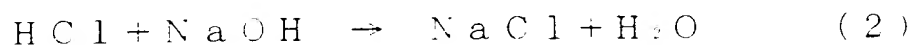
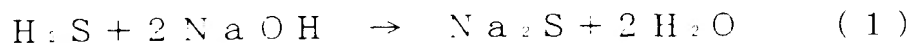
2段ガス化工程においては、可燃物を低温ガス化炉で400～1000℃で熱分解・ガス化して得られた生成ガスは、そのまま高温ガス化炉へ送られ、高温ガス化炉において1000～1500℃の温度で更にガス化され、低分子化される。高温ガス化炉の温度は、生成ガス中に含まれる灰分が溶融する温度以上に維持され、生成ガス中の80～90%の灰分はスラグ化され、溶融スラグとして系外に排出される。生成ガス中の有機物、炭化水素は高温ガス化炉内で完全に水素、一酸化炭素、水蒸気、二酸化炭素にまで分解される。

## 2) 洗淨工程

本発明においては、洗淨工程の洗淨塔にてガスを洗淨水と接触させて硫化水素や塩化水素等の酸性ガスをそれぞれ10ppm以下、望ましく

ある。洗淨水は、硫酸、硝酸、塩酸等の酸液を用いた場合、酸性のガス（硫化水素、

和反応によって吸収除去される。なお、生成ガス中の煤塵が次工程のガス流路閉塞をもたらすので、該工程にて洗浄除去する。

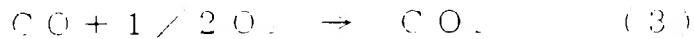


### 3) 一酸化炭素吸着工程

本発明においては、水素ガス中の一酸化炭素濃度を100ppm、望ましくは10ppm以下に保持するために、圧力スイング吸着(PSA)法による一酸化炭素吸着工程を設ける。即ち、CO吸着剤を充填した吸着塔に前記ガスを導きガス中のCOを吸着分離する。COに対する吸着塔の吸着能力を最大に発揮するために、COに対して選択吸着性を示す吸着剤を吸着塔に充填するのが望ましい。即ち、吸着剤としてはCOに対する吸着力が比較的強く、一方でCO<sub>2</sub>、N<sub>2</sub>及びArに対する吸着力が弱い吸着剤であれば良く、例えばゼオライトモレキュラーシーブス又はカーボンモレキュラーシーブス又は活性炭又は活性アルミナが好適であり、COに対し親和力を示す薬剤によって前記吸着剤を改質したCO選択吸着剤がさらに好適である。吸着温度は低いほど有利であるが、温度制御が比較的容易な25～40℃の範囲が好適である。ガス圧力はいうまでもなく高いほど有利であるが、本発明においては、比較的強力な吸着剤を使用するため常圧～4気圧程度、最大で7気圧以下の低圧領域でもCOを十分に吸着分離できる。また、用いる吸着剤が吸着飽和したら、真空ポンプにより減圧脱着を行い、脱着したCOガスを洗浄工程の入口またはガス化工程に返送して回収する。真空ポンプによって脱着圧力を下げていくにつれて、吸着圧と脱着圧との圧力差が拡大するので、吸着塔の処理能力が向上する反面、真空ポンプの電力消費が増大することから、脱着圧力は13300～1330Pa(100～10Torr)の範囲が望ましい。

#### 4) 選択酸化工程

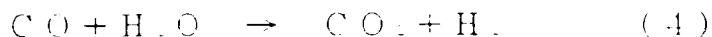
本発明においては、洗浄ガス中の一酸化炭素濃度が5000ppm(0.5%)以上の場合には、選択酸化工程を設けて一酸化炭素を5000ppm以下、望ましくは500ppm以下に下げる。即ち、選択酸化触媒を充填した選択酸化器に前記ガスを導きながら酸素又は空気を供給して下記の選択酸化反応を行う。



供給する酸素の量が多い程一酸化炭素の残留濃度が低くなるが、水素吸蔵合金による水素精製工程を設ける実施形態においては過剰の酸素ガスが水素吸蔵合金を被毒させるおそれがあるので、一酸化炭素に対して1当量前後が望ましい。また、反応温度として100～150℃の範囲が望ましく、触媒としては一酸化炭素に対する選択酸化性が優れしかも反応速度が高いものであれば何でもよいが、白金系触媒又はアルミナ担体に金を担持させた金触媒等が好適である。

#### 5) 変成工程

本発明においては、洗浄ガス中の一酸化炭素濃度が3%以上の場合には一酸化炭素を1%以下、望ましくは0.5%以下に下げると同時に目的ガス成分である水素の濃度を増加させる目的で、変成工程を設ける。即ち、変成触媒を充填した変成器にて下記の変成反応(シフト反応とも云う)を行う。



反応に必要な水蒸気として生成ガス中の水蒸気成分を利用する。上記変成反応は発熱反応なので、反応温度を低下すれば一酸化炭素の平衡濃

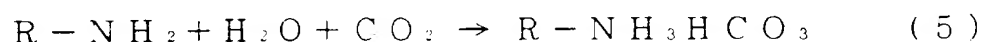
あれば種類を限定し、また、調整されるべきではないが、前記温度範囲

に適した触媒としてCu-Zn系変成触媒などが挙げられる。

なお、ガス化工程のガス化温度が比較的低温、例えば700℃以下だと、ガス化工程で水性ガス反応等のガス反応が十分に進行しないために、生成ガス中にメタンやコール等の炭化水素成分が残る場合がある。この場合、前記変成工程の前段に改質工程を設けることが出来る。即ち、改質工程において700～1000℃で改質触媒作用の下、炭化水素成分を水蒸気と反応させて分解すると共に水素と一酸化炭素を生成する。

#### 6) 二酸化炭素化学吸収工程

本発明においては、二酸化炭素化学吸収工程を設け、吸収塔にてガスと吸収液を接触させてCO<sub>2</sub>を吸収分離する。吸収液としては熱炭酸カリウム吸収液またはアルコールアミン吸収液が好適であり、本発明においては、吸収能力が強いアルコールアミン吸収液がなお好適であり、具体的な吸収剤としてモノエタノールアミン(MEA)、ジエタノールアミン(DEA)、メチルジエタノールアミン(MDEA)などが挙げられる。アルコールアミン吸収液による吸着反応を下記に記す。



前記反応は放熱反応なので吸収温度が低い程有利であるが、温度制御が比較的容易な25～40℃の範囲が好適である。ガス圧力はいうまでもなく高いほど有利であるが、本発明においては、前記強力な吸収液を用いて、常圧～4気圧程度、最大で7気圧以下の低圧領域においてCO<sub>2</sub>を5000ppm以下、望ましくは100ppm以下に吸収分離する。また、前記吸収液が吸収飽和したら、吸収液を再生塔に移送し100～150℃の温度にて再生を行い、CO<sub>2</sub>ガスを回収すると共に、再生後の吸収液を吸収塔に返送する。再生時吸収液を加熱するのに必要な熱源として、ガス化工程で回収される蒸気を用いる。また、ガス中の水蒸気が該工程で凝縮により吸収温度の飽和蒸気圧まで除去され、残留の水蒸気



は次の吸着工程またはその前処理装置にて吸着分離される。なお、硫化水素や塩化水素等の酸性ガスが該工程においてさらに吸収除去される。

#### 7) 二酸化炭素吸着工程

本発明においては、 $\text{CO}_2$ 化学吸着工程の後に圧カスイング吸着（P S A）法による $\text{CO}_2$ 吸着工程を設けて二酸化炭素及び水蒸気をさらに100 p p m以下、望ましくは10 p p m以下に吸着分離する。即ち、 $\text{CO}_2$ 吸着塔に前記ガスを導きガス中の $\text{CO}_2$ を吸着剤と接触させて吸着分離する。 $\text{CO}_2$ に対する吸着塔の吸着能力を最大に発揮するために、 $\text{CO}_2$ に対して選択吸着性を示す吸着剤を吸着塔に充填するのが望ましい。即ち、吸着剤としては $\text{CO}_2$ に対する吸着力が比較的強く、一方で $\text{CO}$ 、特に $\text{N}_2$ と $\text{Ar}$ に対する吸着力が弱い吸着剤であれば良く、例えばゼオライトモレキュラーシーブス又はカーボンモレキュラーシーブス又は活性炭又は活性アルミナが好適である。吸着温度は低いほど有利であるが、温度制御が比較的容易な25～40℃の範囲が好適である。ガス圧力はいうまでもなく高いほど有利であるが、本発明においては、比較的強力な吸着剤を使用するため常圧～4気圧程度、最大で7気圧以下の低圧領域でも $\text{CO}_2$ を十分に吸着分離できる。また、前記吸着剤が吸着飽和したら、真空ポンプにより減圧脱着を行い、脱着した $\text{CO}_2$ ガスを大気放出する。真空ポンプによって脱着圧力を下げていくにつれて、吸着圧と脱着圧との圧力差が拡大するので吸着塔の処理能力が向上する反面、真空ポンプの電力消費が増大することから、脱着圧力は13300～1330 Pa（100～10 Torr）の範囲が望ましい。なお、水蒸気を分別吸着するために、前記二酸化炭素吸着剤を充填した充填層の前段に、水蒸気

吸着

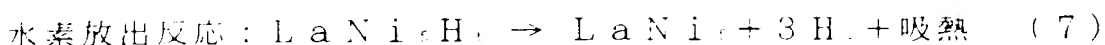
本発明においては、二酸化炭素の化学吸着工程及び圧カスイング吸着工程を、

一酸化炭素の変成工程及び/又は選択酸化工程の後段で一酸化炭素吸着工程の前段に設けるのが下記の理由によるものである。即ち、一酸化炭素変成及び/又は選択酸化工程の前段に二酸化炭素化学吸収又は吸着工程を設けた場合、前記一酸化炭素変成工程及び/又は選択酸化工程において生成する二酸化炭素を除去できないか、一酸化炭素吸着工程で前記二酸化炭素を吸着すると該工程における吸着負荷の増加を招く。また、一酸化炭素吸着工程の後段に二酸化炭素化学吸収又は吸着工程を設けた場合、一酸化炭素吸着工程は大量の二酸化炭素共存下で行うことになるので、該工程の一酸化炭素に対する吸着効率が低下する。しかしながら、上記実施形態は言うまでもなく本発明の請求範囲に含まれるものである。

#### 8) 水素精製工程

本発明においては、 $H_2S$ と $HCl$ がそれぞれ10ppm以下、望ましくは1ppm以下に、 $CO_2$ 、 $CO$ 及び $H_2O$ がそれぞれ100ppm以下、好ましくは10ppm以下に除去されたガスに対し、水素吸蔵合金による水素精製工程を設け、前記ガスを水素吸蔵合金を収容する容器に導き、水素を水素吸蔵合金に冷却しながら吸蔵して水素から $N_2$ と $Ar$ を分離し、次いで水素吸蔵合金の水素吸蔵飽和後に合金容器から窒素ガスとアルゴンガスをパーシしてから、水素吸蔵合金を加熱して水素を放出することによって、水素ガスを昇圧して水素タンクに貯蔵するか、又は水素タンクを経由して燃料電池発電工程に供給する。前記放出精製された水素ガス中の窒素及びアルゴンがそれぞれ100ppm以下に除去され、水素濃度が99.9%以上に達する。用いる水素吸蔵合金としては水素吸蔵容量が大きいものであれば何でもよいが、燐酸型燃料電池または固体高分子型燃料電池から発生する70℃ぐらゐの低位排熱を水素放出時の加熱熱源として利用できるように、水素放出圧が70℃で1～10気圧、好ましくは3～6気圧の吸蔵・放出特性を有する水素吸蔵合金が

望ましく、具体的な合金例としては  $\text{LaNi}_5$  合金や  $\text{TiFe}$  合金が挙げられる。 $\text{LaNi}_5$  合金による水素吸蔵・放出反応を下記に記す。



上記(6)式に示すように水素吸蔵反応が放熱反応のため、水素分圧が一定の場合、特に水素分圧が低い場合では水素吸蔵時において水素吸蔵合金を冷却して吸蔵温度を低く保つ必要がある。水素吸蔵温度が低いほど有利であるが、冷却水によって容易に保持できる  $25 \sim 35^\circ\text{C}$  が好ましい。また、上記(7)式に示すように水素放出反応が吸熱反応なので放出水素の圧力を高くするには、水素放出時に水素吸蔵合金を加熱して放出温度を上げる必要がある。本発明においては、加熱熱源として、燃料電池発電工程を設けている実施形態においては燃料電池スタックの  $70^\circ\text{C}$  前後、条件によっては  $70 \sim 80^\circ\text{C}$  の冷却水を、燃料電池発電工程を設けていない実施形態においてはガス化工程での回収蒸気を用いる。また、前記水素吸蔵合金を、熱交換のためのジャケットを設けた熱交換器形収納容器に収納し、水素の吸蔵と放出を連続的に行うために前記水素吸蔵合金収納容器を少なくとも2系列設け、電磁弁によって切替える。

#### 9) 燃料電池発電工程

本発明においては、燃料電池発電工程を設ける実施形態においては、ガス処理工程で製造した水素ガスの温度が比較的低い、水素濃度が高くしかも一酸化炭素の含有率が低いことから、用いる燃料電池として比較的低い温度で作動する燐酸型燃料電池、とりわけ固体高分子型燃料電池が好適である。燐酸型又は固体高分子型燃料電池の場合における電池反



即ち、水素ガスを燃料電池スタックのアノード極室に、空気又は酸素ガスをカソード極室にそれぞれ供給し上記電池反応により発電する。燐酸型燃料電池と固体高分子型燃料電池の作動温度がそれぞれ200℃前後と80℃前後であるが、前記電池反応が発熱を伴うので、前記作動温度を保つためにはスタックを冷却する必要がある。本発明においては、スタック冷却水を燃料電池発電工程と水素吸蔵合金による水素精製工程との間に循環することにより、スタックの排熱を水素放出時の加熱源として利用する。また、燃料電池発電において発電効率を確保するために、スタックのアノード極室に送った水素ガスは100%消費せずに、30%程度、条件によっては20～30%程度を残しオフガスとしてスタックより排出するようにしているのが一般的である。本発明においては、前記オフガスを水素精製工程に導いて回収し、再度精製、昇圧してスタックに供給する。なお、オフガスに水蒸気が含まれている場合は、水素精製工程の前に水蒸気除去装置を設けることができる。

#### 図面の簡単な説明

図1は本発明による水素製造システムの説明図である。

図2は本発明による燃料電池発電システムの説明図である。

図3は図1に示す水素製造システム及び図2に示す燃料電池発電システムにおけるガス処理工程を示す概略図である。

図4は本発明の第1実施例である燃料電池発電システムの基本構成図である。

図5は本発明の第2実施例である燃料電池発電システムの基本構成図である。

図6は本発明の第3実施例である水素製造システムの基本構成図である。

図 7 は本発明の第 4 実施例である水素製造システムの基本構成図である。

図 8 は本発明の第 5 実施例である水素製造システムの基本構成図である。

図 9 は本発明の第 6 実施例である水素製造システムの基本構成図である。

図 10 は本発明の第 7 実施例である燃料電池発電システムの基本構成図である。

図 11 は本発明のガス化工程を実施する装置の第 1 実施例を示す図である。

図 12 は本発明のガス化工程を実施する装置の第 2 実施例を示す図である。

図 13 は本発明の第 2 実施例の主要構成機器の典型的な形状を示した図である。

図 14 は本発明のガス化工程を実施する装置の第 3 実施例を示す図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明に係る可燃物のガス化による水素製造システム並びに燃料電池発電システムの実施形態を図 1 乃至図 10 を参照して説明する。図 1 乃至図 10 において、同一又は対応する工程又は部材には、同一の符号を付し、重複する説明を省略する。

図 1 は本発明の水素製造システムを示す概略図である。図示するよう

に製造する。

図2は本発明の燃料電池発電システムを示す概略図である。図示するように、本発明の燃料電池発電システムにおいては、図1に示す工程によって得られた水素ガスcを燃料電池発電工程9に供給して発電する。

図3は、図1に示す水素製造システム及び図2に示す燃料電池発電システムにおけるガス処理工程を示す概略図である。図示するように、本発明のガス処理工程1aは、硫化水素や塩化水素の除去に係る洗浄工程2、一酸化炭素の分離に係る選択酸化工程4、変成工程3及び吸着工程7、二酸化炭素の分離に係る化学吸収工程5及び吸着工程6、そして窒素、アルコールの分離に係る水素精製工程8の組み合わせによって構成される。

図4は本発明の第1実施例である燃料電池発電システムの基本構成図である。可燃物aと酸素又は空気13をガス化工程1に供給し、可燃物aが600から1400℃の温度域で熱分解を受けて生成ガスbと不燃物12を生成する。生成ガスbをブロウ14で洗浄工程2の洗浄塔21に送り、洗浄塔21において生成ガスbを洗浄水23と接触させて、生成ガス中の硫化水素や塩化水素等の酸性ガスを10ppm以下、望ましくは1ppm以下に除去する。洗浄水23を循環ポンプ24によって洗浄塔21に循環させ、そして洗浄水23の一部を常時引抜きと同時に同じ量の新しい洗浄水を補給する。洗浄工程2を出た洗浄ガス22を冷却器43で30℃前後に冷却してから、ガス52を一酸化炭素吸着工程7の吸着塔71に導き、ここで一酸化炭素吸着剤と接触させて一酸化炭素を100ppm以下、望ましくは10ppm以下に吸着除去する。吸着塔71は少なくとも3系列、条件によっては少なくとも2系列の吸着塔からなり、各系列の吸着塔が交互に吸着と脱着を繰り返す。吸着塔71の吸着剤が吸着飽和したら真空ポンプ73によって脱着再生を行い、脱着した一酸化炭素ガス74をガス化工程1に返送する。ガス化工程1に返

送された一酸化炭素ガス74がガス化工程1において水蒸気と変成反応し、その結果、水素と二酸化炭素に変わる。次いで、一酸化炭素除去後のガス72を燃料電池発電工程9の燃料電池スタック91のアノード極室に供給すると共に、空気92を空気フロー93によって電池スタック91のカソード極室に送って発電し、アノード極室からアノードオフガス94が、カソード極室からカソードオフガス95がそれぞれ排出される。発電に伴う電池スタックの発熱を冷却水96b、96aによって冷却する。符号97は発電電力出力である。

図5は本発明の第2実施例である燃料電池発電システムの基本構成図である。前記第1実施例で説明した洗浄ガス22を熱交換器33を経由して変成工程3の変成器31に導入し、洗浄ガス中の一酸化炭素と水蒸気を200～250℃、変成触媒の作用下で二酸化炭素と水素とに変成させ、一酸化炭素の濃度を1%以下、好ましくは0.5%以下に下げる。変成器31を出た変成後のガス32を熱交換器33で熱回収後、冷却器43でさらに30℃前後に冷却した後、ガス52を第2ブロウ63によって前記第1実施例で説明した一酸化炭素吸着工程7に送る。なお、本実施例並びに後述する第3～7実施例においては、吸着塔71で脱着した一酸化炭素ガス74はブロウ14の吸引口に返送する。

図6は本発明の第3実施例である燃料電池発電システムの基本構成図である。前記第2実施例で説明した変成後のガス32を熱交換器33で熱回収後、選択酸化工程4の選択酸化器41に導き、選択酸化器41において供給された酸素又は空気と100～150℃、選択酸化触媒作用下で反応させ、変成後のガス32中の一酸化炭素濃度を5000ppm

を第2ブロウ63によって前記第1実施例で説明した一酸化炭素吸着工

程 7 に送る。

図 7 は本発明の第 4 実施例である水素製造システムの基本構成図である。前記選択酸化工程 4 を出た選択酸化後のガス 4 2 を冷却器 4 3 で 30℃前後に冷却した後、二酸化炭素化学吸収工程 5 の吸収塔 5 1 a に送り、ここで再生後吸収液 5 3 a と接触させて二酸化炭素を 1000 ppm 以下、望ましくは 100 ppm 以下に除去する。同時に、該工程で硫化水素や塩化水素等の酸性ガスがさらにそれぞれ 1 ppm 以下に除去される。一方、吸収後吸収液 5 3 b を熱交換器 5 4 を経て再生塔 5 1 b に導き、ガス化工程から回収された蒸気 5 7 によって 100～150℃に加熱し吸収液を再生すると共に炭酸ガス 5 5 を回収する。再生後吸収液を送液ポンプ 5 6 によって、熱交換器 5 4 を経て再び吸収塔 5 1 a に送る。

二酸化炭素化学吸収工程 5 を出た吸収後のガス 5 2 を第 2 ブロウ 6 3 によって一酸化炭素吸着工程 7 に導き、該工程で一酸化炭素を 100 ppm 以下、好ましくは 10 ppm 以下に除去した後、一酸化炭素除去後のガス 7 2 を水素精製工程 8 に送る。水素精製工程 8 は少なくとも 2 系列の水素吸蔵合金容器 8 1 a, 8 1 b と、少なくとも 1 系列の水素タンク 8 2 からなる。2 系列の水素吸蔵合金容器がそれぞれ水素吸蔵と水素放出を行い、水素吸蔵と放出の切替えは粗水素入口電磁弁 8 4 a, 8 4 b、精製水素出口電磁弁 8 5 a, 8 5 b、窒素、アルゴン出口電磁弁 8 6 a, 8 6 b によって行われる。ここでは、合金容器 8 1 a が水素放出操作を、合金容器 8 1 b が水素吸蔵操作を行う場合について説明する。

この場合、電磁弁 8 4 b を開いて一酸化炭素除去後のガス 7 2 を合金容器 8 1 b に導入し 25～35℃の温度で水素を吸蔵する。冷却水 8 8 a を合金容器 8 1 b のジャケットに導入して水素吸蔵時発熱を冷却除去する。飽和吸蔵後に電磁弁 8 4 b を閉め電磁弁 8 6 b を開いて、合金容



器 8 1 b の合金充填層の空隙にたまった窒素とアルゴンガス及びその他の微量不純物ガス 8 3 を放出する。一方、電磁弁 8 4 a 及び 8 6 a が閉に、電磁弁 8 5 a が開になっている合金容器 8 1 a のジャケットに、ガス化工程で回収された 120℃以上の蒸気 8 9 a を導入して水素吸蔵合金に吸蔵された水素を放出させ、放出した精製水素 8 7 a を水素タンク 8 2 を経由して、燃料電池等の需要先に供給する。精製水素ガス 8 7 a 及び 8 7 b の純度と圧力はそれぞれ 99.9%以上及び2気圧以上に達する。

図 8 は本発明の第 5 実施例である水素製造システムの基本構成図である。前記選択酸化工程 4 を出た選択酸化後のガス 4 2 を冷却器 4 3 で 30℃前後に冷却した後に、第 2 ブロワ 6 3 によって二酸化炭素吸着工程 6 の吸着塔 6 1 に送り、二酸化炭素吸着剤と接触させてガス中の二酸化炭素を 100 ppm 以下、望ましくは 10 ppm 以下に吸着除去する。吸着塔 6 1 は少なくとも 3 系列、条件によっては少なくとも 2 系列の吸着塔からなり、各系列の吸着塔が交互に吸着と脱着を繰返す。吸着塔 6 1 の吸着剤が吸着飽和したら真空ポンプ 6 4 によって脱着再生を行い、脱着した二酸化炭素を大気放出する。次に、二酸化炭素除去後のガス 6 2 を前記第 4 実施例で説明した一酸化炭素吸着工程 7 の吸着塔 7 1 に送る。

図 9 は本発明の第 6 実施例である水素製造システムの基本構成図である。本実施例では、前記第 4 実施例で説明した二酸化炭素化学吸収工程 5 を出た二酸化炭素吸収後のガス 5 2 を、前記第 5 実施例で説明した二酸化炭素吸着工程 6 の吸着塔 6 1 に送り、ガス中の二酸化炭素をさらに

ていゝことで、二酸化炭素吸着工程 6 によって二酸化炭素吸着負荷を軽減

に小さい。そのため、二酸化炭素吸着剤と一酸化炭素吸着剤を同一の吸着塔に充填することによって該二つの工程を一つの工程にすることができる。充填方法としては二酸化炭素吸着剤と一酸化炭素吸着剤を均一に混合充填するか、又はそれぞれを層状に充填して層を上下に重ねる。

図10は本発明の第7実施例である燃料電池発電システムの基本構成図である。前記第6実施例で説明した精製水素ガス87bを燃料電池9の燃料電池スタック91のアノード極室に供給して発電する。本実施例では、スタック91のカソード極室から出たアノードオフガス94を水素精製工程8に導き水素ガスを回収する。前記オフガス94に水蒸気が含まれている場合は脱湿装置を別途設けて水蒸気を予め取除くことができる。また、スタック91の冷却水96aを水素精製工程8の合金容器81aのジャケットに導入して水素吸蔵後の水素吸蔵合金を加熱し精製水素87aを放出させる。一方、合金容器81aのジャケットを出たスタック冷却水96bを、再びスタック91を冷却するためにスタック91に循環する。スタックの冷却温度と水素吸蔵合金の水素放出温度の一例として、前記燃料電池スタック91を出たスタック冷却水96a（出口）、即ち水素吸蔵合金容器81aのジャケット入口温水の温度が75℃であり、スタック冷却水96b（入口）、即ち水素吸蔵合金容器81aのジャケット出口温水の温度が70℃であってよい。

次に、本発明のガス化工程の詳細を図11乃至図14を参照して説明する。

図11は本発明のガス化工程を実施する装置の第1実施例を示す図である。図11に示すように、原料フィーダ101から流動層ガス化炉である低温ガス化炉102に供給された可燃物aは400℃から1000℃の温度域で熱分解を受け、燃料電池発電のための有効ガス成分である水素と一酸化炭素、及び若干の炭化水素を含んだガスを生成する。この

場合、投入時の温度から  $400^{\circ}\text{C} \sim 1000^{\circ}\text{C}$  への昇温は、可燃物 a を部分燃焼させることにより行う。また可燃物 a 中に混入した不燃物は、ガス化炉 102 から排出される。低温ガス化炉には流動床炉の他、ロータリーキルン、ストーカ炉等を用いても良いが、都市ゴミのように不定形で、かつ不燃物を含む可燃物を原料とする場合には、流動床炉の方が望ましい。なぜなら流動床炉であれば炉から排出されるべき不燃物に未燃物が付着しないので、不燃物の処理、処分における問題が少ないからである。また流動床炉を採用する場合の層温は、熱分解を阻害しない範囲で低い方、具体的には  $400^{\circ}\text{C}$  以上  $600^{\circ}\text{C}$  以下で運転する方が、不燃物が酸化されないので再利用し易く、好ましい。

低温ガス化炉 102 から出た生成ガスと灰分等の固形分は集塵装置 103 に送られるが、この時の集塵装置の入口温度は  $400^{\circ}\text{C}$  以上  $650^{\circ}\text{C}$  以下に保たれている。低温ガス化炉 102 における下流部、即ちフリーボード部では、熱分解吸熱反応が進むため、ガス温度が流動層部よりも低下するので、たとえ流動層温度が  $950^{\circ}\text{C}$  であっても、フリーボード部でのガス温度は  $650^{\circ}\text{C}$  より低温になる可能性はあるが、ガス温度が高い場合には輻射ボイラを設けることで対応する。ガス温度が  $400^{\circ}\text{C}$  以下になる場合には、ターレットラブルを避けるためにフリーボード部に空気もしくは酸素を供給し、ガス温度を上げる必要がある。集塵装置としてはサイクロンを用いても良いが、集塵性能の高いフィルター方式を採用するのが望ましい。 $400^{\circ}\text{C} \sim 650^{\circ}\text{C}$  といった温度域では、集塵装置として高温バグフィルターも用いることができるが、近年開発が急ピッチで進められているセラミックフィルターなどを用いても良い。

図 1 とは本発明のガス化装置を実施する装置の第一実施例を示すもので

ある。図 1 2 は廃プラスチック等の発熱量の高い可燃物を原料とした場合の実施例を示す。可燃物 a を低温ガス化炉 1 0 2 で 4 0 0 ~ 1 0 0 0 °C で熱分解・ガス化して得られた生成ガスは、そのまま高温ガス化炉 1 1 5 へ送られ、高温ガス化炉 1 1 5 において 1 0 0 0 ~ 1 5 0 0 °C の温度で更にガス化され、低分子化される。高温ガス化炉 1 1 5 の温度は、生成ガス中に含まれる灰分が溶融する温度以上に維持され、生成ガス中の 8 0 ~ 9 0 % の灰分はスラグ化され、溶融スラグ 1 2 6 として系外に排出される。生成ガス中の有機物、炭化水素は高温ガス化炉内で完全に水素、一酸化炭素、水蒸気、二酸化炭素にまで分解される。高温ガス化炉 1 1 5 で得られた生成ガスは、その後、輻射ボイラからなる排熱ボイラ 1 1 9 で 6 5 0 °C 以下にまで冷却され、溶融アルカリ金属塩類を凝固させ、この溶融アルカリ金属塩類を集塵装置 1 0 3 で捕集する。一方、排熱ボイラ 1 1 9 で得られた蒸気は、蒸気タービンに供給され、動力回収される。

有機物の完全分解と、固形分除去の完了した生成ガス b は、前述したガス処理工程 1 a へ送られる。図 1 2 に示すガス化工程において、高温ガス化炉 1 1 5 は燃料改質と灰のスラグ化という 2 つの機能を果たしている。このプロセスは灰がスラグ化でき、しかも灰をアルカリ金属塩類や低融点金属類とは別に取り出せるということで、灰処分の問題を軽減できるという大きなメリットがある。

図 1 3 は第 2 実施例の主要構成機器の典型的な形状を示したものである。低温ガス化炉 1 0 2 は内部旋回流を有する円筒形流動床炉であり、原料の炉内拡散性を高めて安定したガス化を行わせている。炉内中央の流動媒体が沈降している部分には酸素を含まないガスを供給し、炉内周辺部にのみ酸素を供給することにより、低温ガス化炉内で発生したチャーの選択燃焼が可能になり、炭素転換率、冷ガス効率の向上に寄与する。

また高温ガス化炉 1 1 5 は巡回型溶融炉である。

図 1 3 に示す円筒形流動床炉を、以下に詳細に説明する。円筒形流動床炉の炉床には、円錐状の分散板 1 0 6 が配置されている。分散板 1 0 6 を介し供給される流動化ガスは、炉底中央部 2 0 4 付近から炉内へ上向き流として供給される中央流動化ガス 2 0 7 及び炉底周辺部 2 0 3 から炉内へ上向き流として供給される周辺流動化ガス 2 0 8 からなる。

中央流動化ガス 2 0 7 は酸素を含まないガスからなり、周辺流動化ガス 2 0 8 は酸素を含むガスからなっている。流動化ガス全体の酸素量が、可燃物の燃焼に必要な理論燃焼酸素量の 1 0 % 以上 3 0 % 以下とされ、炉内は、還元雰囲気とされる。

中央流動化ガス 2 0 7 の質量速度は、周辺流動化ガス 2 0 8 の質量速度より小にされ、炉内周辺部上方における流動化ガスの上向き流がデフレクタ 2 0 6 により炉の中央部へ向かうように転向される。それによって、炉の中央部に流動媒体（硅砂を使用）が沈降拡散する移動層 2 0 9 が形成されるとともに炉内周辺部に流動媒体が活発に流動化している流動層 2 1 0 が形成される。流動媒体は、矢印 1 1 8 で示すように、炉周辺部の流動層 2 1 0 を上昇し、次にデフレクタ 2 0 6 により転向され、移動層 2 0 9 の上方へ流入し、移動層 2 0 9 中を下降し、次に矢印 1 1 2 で示すように、分散板 1 0 6 に沿って移動し、流動層 2 1 0 の上方へ流入することにより、流動層 2 1 0 と移動層 2 0 9 の中を矢印 1 1 8 および 1 1 2 で示すように循環する。

原料フィード 1 0 1 によって移動層 2 0 9 の上部へ供給された可燃物 a は、流動媒体とともに移動層 2 0 9 中を下降する間に、流動媒体のす

（生成物）は燃焼され、移動層 2 0 9 中を下降する間に、流動媒体のす

抜ける。それ故、移動層 209 は、ガス化ゾーン G を形成する。フリーボード 107 へ移動した生成ガスは、矢印 120 で示すように上昇し、フリーボード 107 を経てガス出口 108 から生成ガス g として排出される。

移動層 209 でガス化されない、主としてチャー（固定炭素分）やタールは、移動層 209 の下部から、流動媒体とともに矢印 112 で示すように炉内周辺部の流動層 210 の下部へ移動し、比較的酸素含有量の多い周辺流動化ガス 208 により燃焼され、部分酸化される。流動層 210 は、可燃物の酸化ゾーン S を形成する。流動層 210 内において、流動媒体は、流動層内の燃焼熱により加熱され高温となる。高温になった流動媒体は、矢印 118 で示すように、デフレクタ 206 により反転され、移動層 209 へ移り、再びガス化の熱源となる。流動層の温度は、400～1000℃、好ましくは 400～600℃に維持され、抑制された燃焼反応が継続するようにされる。流動層ガス化炉の底部外周側の部分には、不燃物を排出するためのリング状の不燃物排出口 205 が形成されている。

図 13 に示す流動層ガス化炉によれば、流動層炉内にガス化ゾーン G と酸化ゾーン S が形成され、流動媒体が両ゾーンにおいて熱伝達媒体となることにより、ガス化ゾーン G において、発熱量の高い良質の可燃ガスが生成され、酸化ゾーン S においては、ガス化困難なチャーやタールを効率よく燃焼させることができる。それ故、廃棄物等の可燃物のガス化効率を向上させることができ、良質の生成ガスを生成することができる。もちろんこの流動層ガス化炉は第 1 実施例から第 3 実施例までの低温ガス化炉としても最適なものである。なお、低温ガス化炉には円筒形流動床炉に限ることなく、前の実施例と同様、キルンやストーカー方式の炉を採用しても良い。

次に、旋回型溶融炉を説明する。高温ガス化炉 1 1 5 としての旋回型溶融炉は垂直の軸線を有する円筒形の 1 次ガス化室 1 1 5 a、および水平からわずかに下向きに傾斜した 2 次ガス化室 1 1 5 b、およびその下流に配され、ほぼ垂直の軸線を有する 3 次ガス化室 1 1 5 c によって構成されている。2 次ガス化室 1 1 5 b と 3 次ガス化室 1 1 5 c の間にスラグ排出口 1 4 2 を有し、ここで大部分の灰分はスラグ化して排出される。旋回型溶融炉に供給される生成ガスは 1 次ガス化室 1 1 5 a 内で旋回流を生じるよう、接線方向に供給される。流入した生成ガスは旋回流を形成し、ガス中の固形分は遠心力によって周辺の壁面に捕捉されるのでスラグ化率、スラグ捕集率が高く、スラグミストの飛散が少ないのが特長である。

旋回溶融炉内には炉内を適正な温度分布に保つよう、複数のノズル 1 3 4 から酸素が供給される。1 次ガス化室 1 1 5 a、2 次ガス化室 1 1 5 b までで完全に炭化水素の分解と灰のスラグ化を完了させるように温度分布を調整する。酸素の単独供給はノズルの焼損等を引き起こす恐れがあるので、必要に応じて蒸気等で希釈して供給される。また、蒸気は蒸気改質による炭化水素の低分子化に寄与するので不足しないように供給しなければならない。なぜなら、炉内は高温であり、水蒸気が不足すると縮合重合反応により反応性の著しく劣るグラファイトが生成され、未燃損失の原因となるからである。

スラグは 2 次ガス化室 1 1 5 b の下面を流下し、スラグ排出口 1 4 2 から溶融スラグ 1 2 6 として排出される。3 次ガス化室 1 1 5 c はその下流に設けられた排熱ボイラからの輻射冷却によってスラグ排出口 1 4

室 1 1 5 c の上流端には生成ガスを排気する排気口 1 1 1 が設けられ、

た下部には輻射板 1 4 8 が設けられている。輻射板 1 4 8 は輻射により排気口 1 4 4 から失われる熱量を減少させる機能を有する。なお符号 1 3 2 は始動バーナ、符号 1 3 6 は助燃バーナである。生成ガス中の有機物、炭化水素は高温ガス化炉内で完全に水素、一酸化炭素、水蒸気、二酸化炭素にまで分解される。高温ガス化炉 1 1 5 で得られた生成ガスは排気口 1 4 4 から排出され、その後、輻射ボイラからなる排熱ボイラ 1 1 9 で 6 5 0℃以下にまで冷却され、溶融アルカリ金属塩類を凝固させ、この溶融アルカリ金属塩類を集塵装置 1 0 3 で捕集する。なお、高温ガス化炉は本旋回溶融炉に限られず、他の型式のガス化炉であってもよい。

図 1 4 は本発明のガス化工程を実施する装置の第 3 実施例を示す図である。図 1 4 は高温ガス化炉の形状をスラグ排出に有利な形状に変えたものである。即ち、高温ガス化炉 1 1 5 は、上下の二段式に構成されており、生成ガスは高温ガス化炉 1 1 5 の上段側より流入して下段側に流れる。この場合、スラグが重力で落下する方向にガスも流れるので、流れが自然でスラグ排出口での閉塞トラブルが少ない。高温ガス化炉 1 1 5 の下段側に輻射ボイラからなる排熱ボイラ 1 1 9 が設置されている。その他の構成は図 1 2 に示す第 2 実施例と同様である。

以上に説明したように、本発明によれば、可燃物をガス化し、生成したガスから燃料電池発電に適した高品質の水素ガスを低コストかつ高効率で製造することができる。そして、製造した水素ガスを用いて燃料電池発電を効率よく行うことができる。

本発明は、より具体的には以下に列挙する効果を奏する。

(1) 各々の不純物ガスをその分離特性によってグループ分けし、それぞれの分離特性と濃度範囲に応じて最適の分離技術を用いることができる。

(2) 安価でエネルギー効率が低い送風機（ブロー）又は単段型圧縮機



で達成可能な常圧～4気圧程度、最大で7気圧以下の低圧条件においてガス処理を行うことができる。

(3) 電力を消費することなくガス中のN<sub>2</sub>とArガスを分離すると共に水素ガスを昇圧する目的で水素吸蔵合金による水素精製工程を設け、水素吸蔵合金の水素放出時の加熱熱源として、燃料電池の排熱又はガス化工程で発生する熱エネルギーを利用することができる。

#### 産業上の利用の可能性

本発明は、可燃物のもつ化学エネルギーを水素ガスの形で回収する技術、さらには高効率で電気エネルギーに変換する、エネルギー変換技術に係り、可燃性廃棄物や石炭等の可燃物をガス化し、生成ガスから水素ガスを製造するシステムに利用可能であり、さらには製造した水素ガスを燃料電池に供給して発電する発電システムに利用可能である。

## 請求の範囲

1. 可燃物をガス化させるガス化工程と、該ガス化工程にて生成したガスを精製して水素を製造するガス処理工程からなる水素製造方法であって、

前記ガス処理工程は、前記ガス化工程で得られた生成ガスを水またはアルカリ性溶液と接触させてガス中の煤塵と塩化水素や硫化水素等の微量の酸性ガスとを吸収除去するガス洗浄工程と、該ガス洗浄工程にて洗浄された生成ガスを一酸化炭素吸着剤と接触させて一酸化炭素を吸着分離する一酸化炭素吸着工程とを含むことを特徴とする可燃物のガス化による水素製造方法。

2. 前記ガス洗浄工程の後に、前記洗浄された生成ガス中の一酸化炭素を含酸素ガスとの触媒反応により選択的に酸化する選択酸化工程を設けたことを特徴とする請求項 1 に記載の可燃物のガス化による水素製造方法。

3. 前記ガス洗浄工程の後又は前記選択酸化工程の前に、前記生成ガス中の一酸化炭素と水蒸気を触媒反応により水素ガスと二酸化炭素に変成する変成工程を設けたことを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載の可燃物のガス化による水素製造方法。

4. 前記一酸化炭素吸着工程の前に、前記生成ガス中の二酸化炭素をアルカリ性吸収液と接触させて吸収分離する二酸化炭素化学吸収工程を設けたことを特徴とする請求項 1 乃至 3 のいずれか 1 項に記載の可燃物のガス化による水素製造方法。

5. 前記一酸化炭素吸着工程の前に、前記生成ガス中の二酸化炭素を二酸化炭素吸着剤と接触させて吸着分離する二酸化炭素吸着工程を設けたことを特徴とする請求項 1 乃至 4 のいずれか 1 項に記載の可燃物のガス化による水素製造方法。

6. 前記一酸化炭素吸着工程の後に、前記生成ガス中の窒素とアルゴンとを分離すると共に、水素ガスを昇圧する水素吸蔵合金を用いた水素精製工程を設けたことを特徴とする請求項 1 乃至 5 のいずれか 1 項に記載の可燃物のガス化による水素製造方法。

7. 請求項 1 乃至 6 のいずれか 1 項に記載の方法で製造した水素ガスを燃料電池に供給して発電することを特徴とする可燃物のガス化による発電方法。

8. 前記燃料電池の冷却で回収される排熱を、請求項 6 に記載の水素吸蔵合金による水素放出時の加熱熱源として用いることを特徴とする請求項 7 に記載の可燃物のガス化による発電方法。

9. 前記燃料電池発電工程で用いる燃料電池は、固体高分子型燃料電池又は燐酸型燃料電池であることを特徴とする請求項 7 又は 8 に記載の可燃物のガス化による発電方法。

10. 可燃物をガス化させるガス化炉と、該ガス化炉にて生成したガスを精製して水素を製造するガス処理装置からなる水素製造装置であって、

前記ガス処理装置は、前記ガス化炉で得られた生成ガスを水またはアルカリ性溶液と接触させてガス中の煤塵と塩化水素や硫化水素等の微量の酸性ガスとを吸収除去する洗浄塔と、該洗浄塔にて洗浄された生成ガスを一酸化炭素吸着剤と接触させて一酸化炭素を吸着分離する一酸化炭素吸着塔とを含むことを特徴とする可燃物のガス化による水素製造装置。

11. 前記洗浄塔の後段に、前記洗浄された生成ガス中の一酸化炭素を酸素ガスとの触媒反応により選択的に酸化する選択酸化器を設けたことを特徴とする請求項10に記載の可燃物のガス化による水素製造装置。

12. 前記洗浄塔の後段又は前記選択酸化器の前段に、前記生成ガス中の一酸化炭素と水蒸気を触媒反応により水素ガスと二酸化炭素に変成する変成器を設けたことを特徴とする請求項11に記載の可燃物のガス化による水素製造装置。

13. 前記一酸化炭素吸着塔の前段に、前記生成ガス中の二酸化炭素をアルカリ性吸収液と接触させて吸収分離する二酸化炭素吸収塔を設けたことを特徴とする請求項10乃至12のいずれか1項に記載の可燃物のガス化による水素製造装置。

14. 前記一酸化炭素吸着塔の前段に、前記生成ガス中の二酸化炭素を二酸化炭素吸着剤と接触させて吸着分離する二酸化炭素吸着塔を設けたことを特徴とする請求項10乃至13のいずれか1項に記載の可燃物のガス化による水素製造装置。

15. 前記一酸化炭素吸着塔の後段に、前記生成ガス中の窒素とアルゴンを分離すると共に、水素ガスを昇圧する水素吸蔵合金を充填した合金収納容器を設けたことを特徴とする請求項10乃至14のいずれか1項に記載の可燃物のガス化による水素製造装置。

16. 請求項10乃至15のいずれか1項に記載の装置で製造した水素ガスを燃料電池に供給して発電することを特徴とする可燃物のガス化による発電システム。

17. 前記燃料電池の冷却で回収される排熱を、請求項15に記載の水素吸蔵合金による水素放出時の加熱熱源として用いることを特徴とする請求項16に記載の可燃物のガス化による発電システム。

18. 前記燃料電池は、固体高分子型燃料電池又は燐酸型燃料電池であることを特徴とする請求項16又は17に記載の可燃物のガス化による発電システム。



1/13

FIG. 1

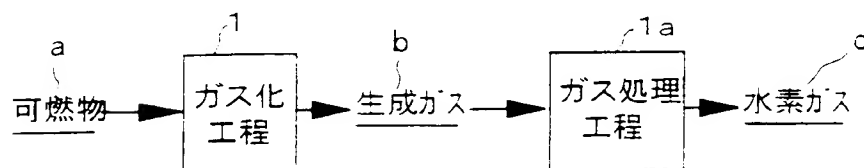
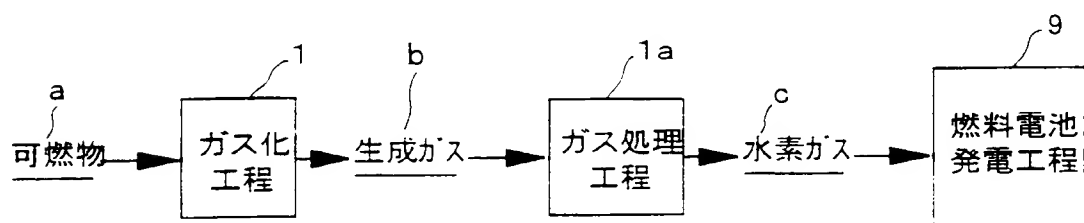


FIG. 2

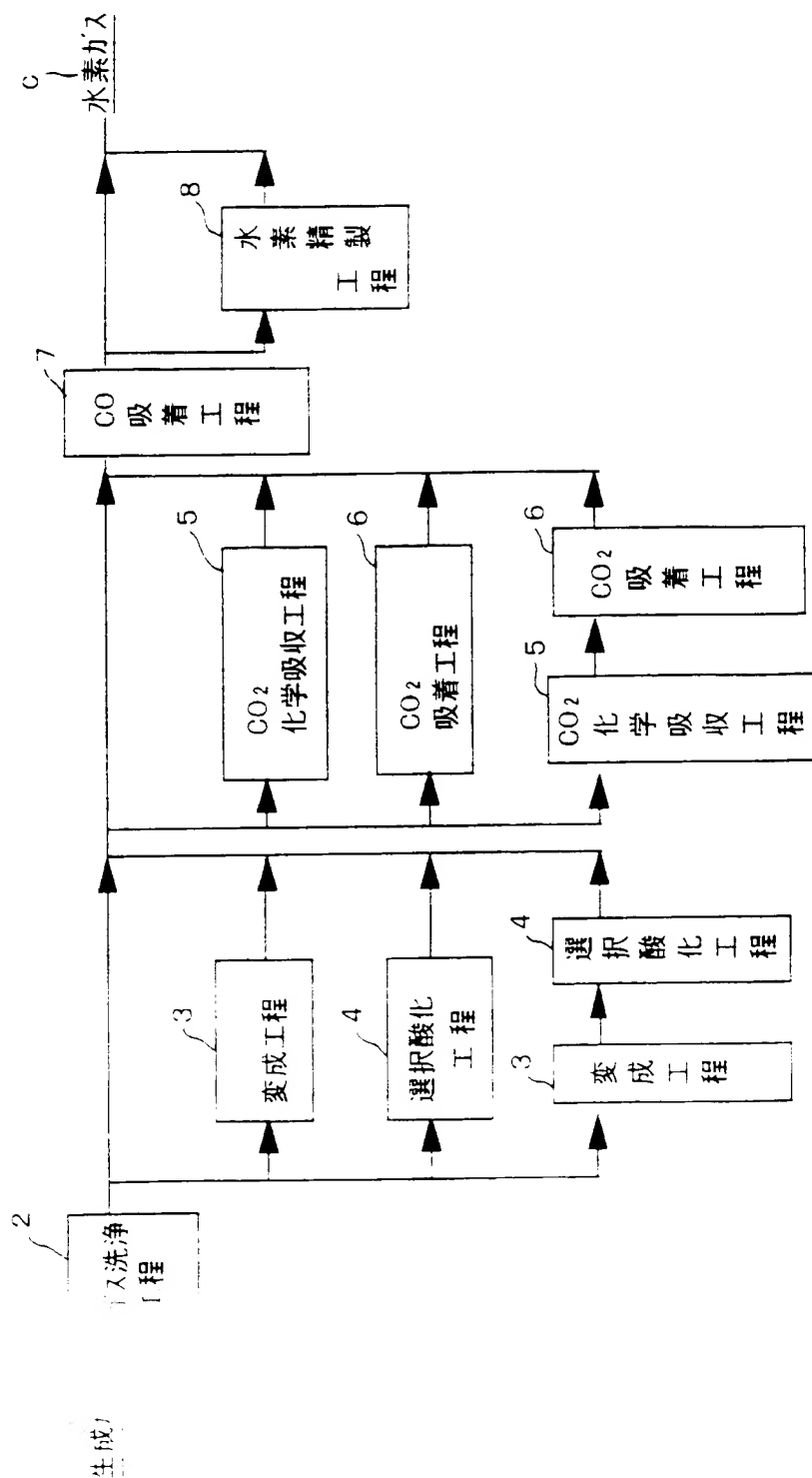






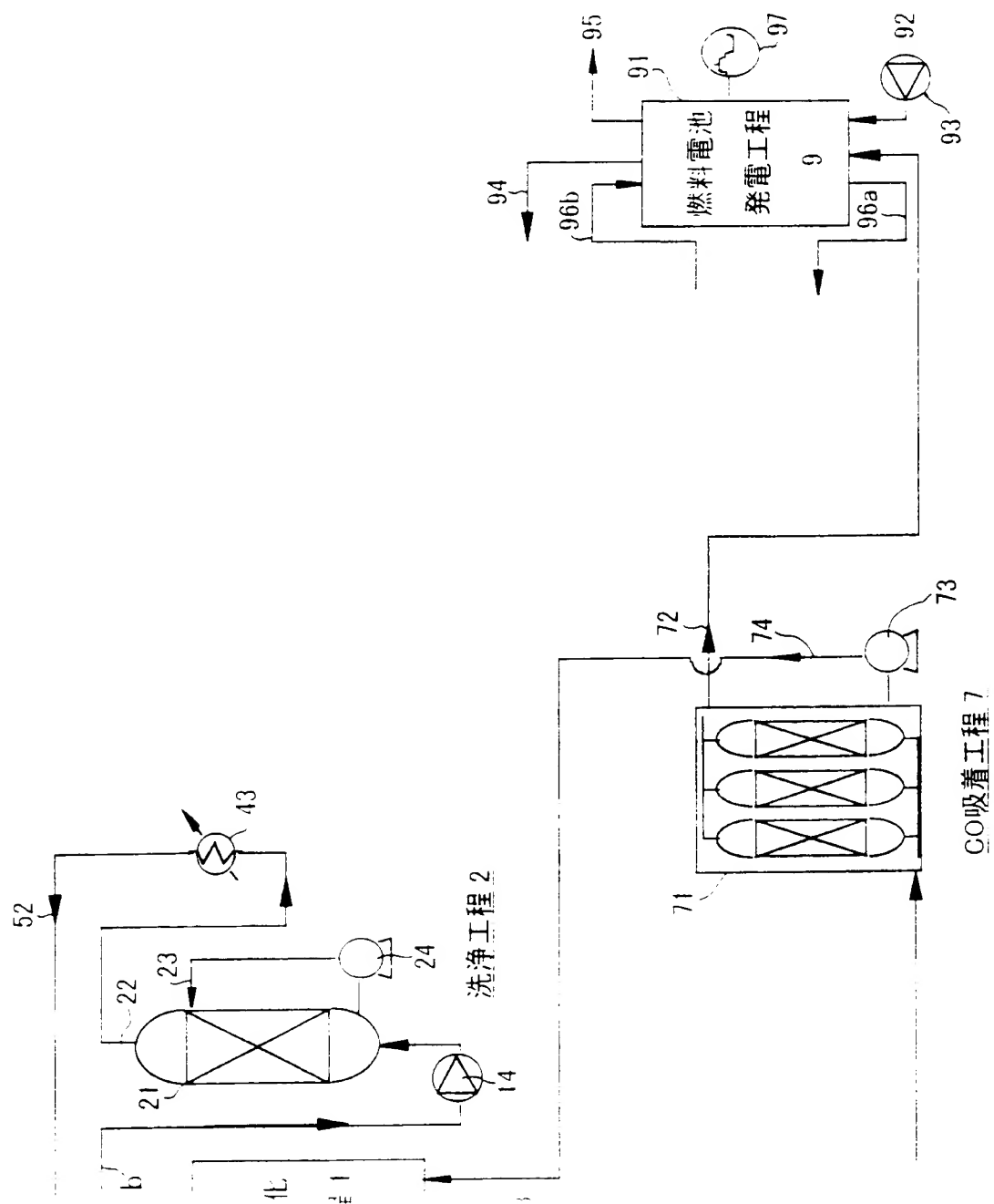
2/13

FIG. 3





**Fig. 4**





4/13

IG. 5

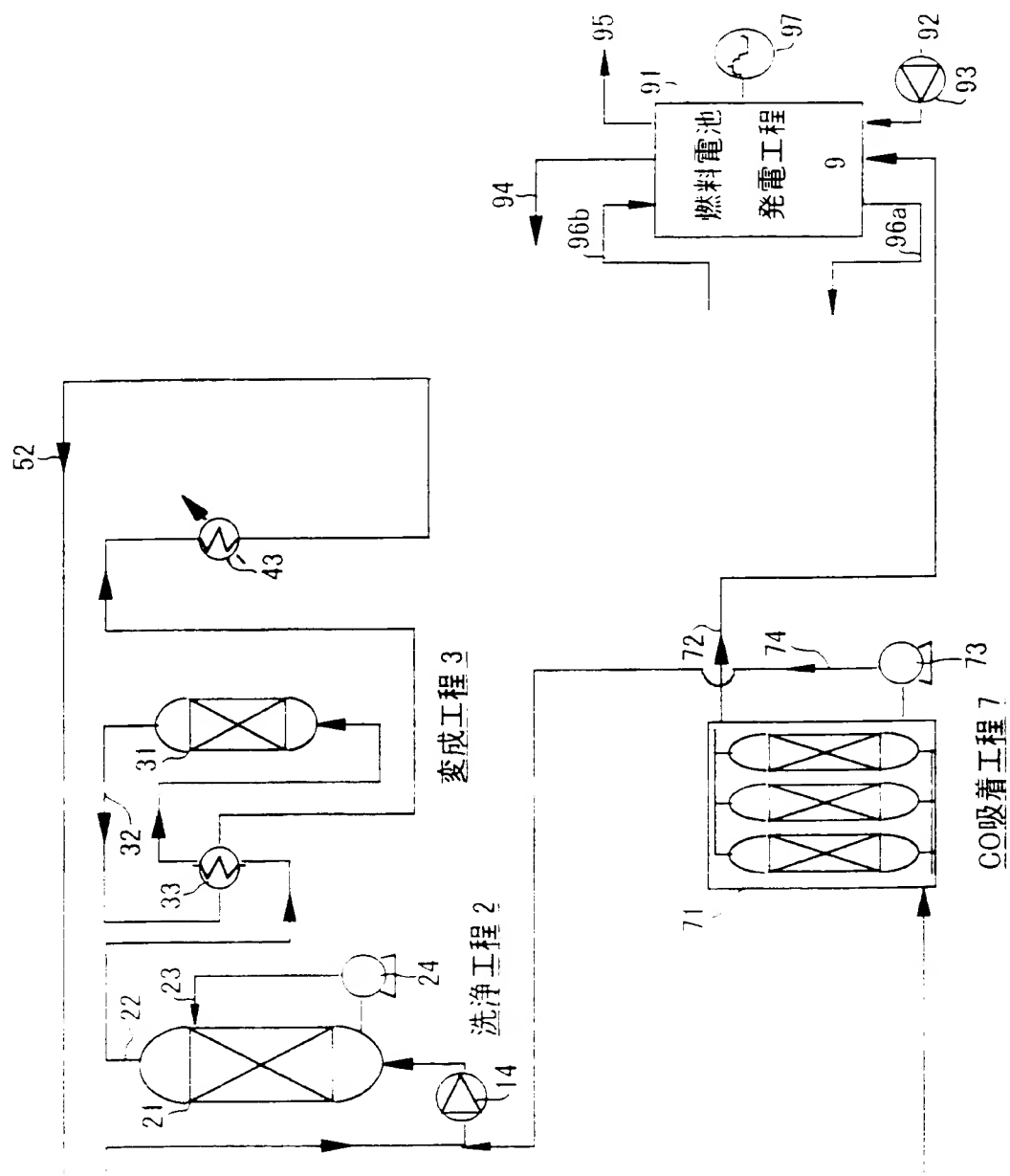




FIG. 6

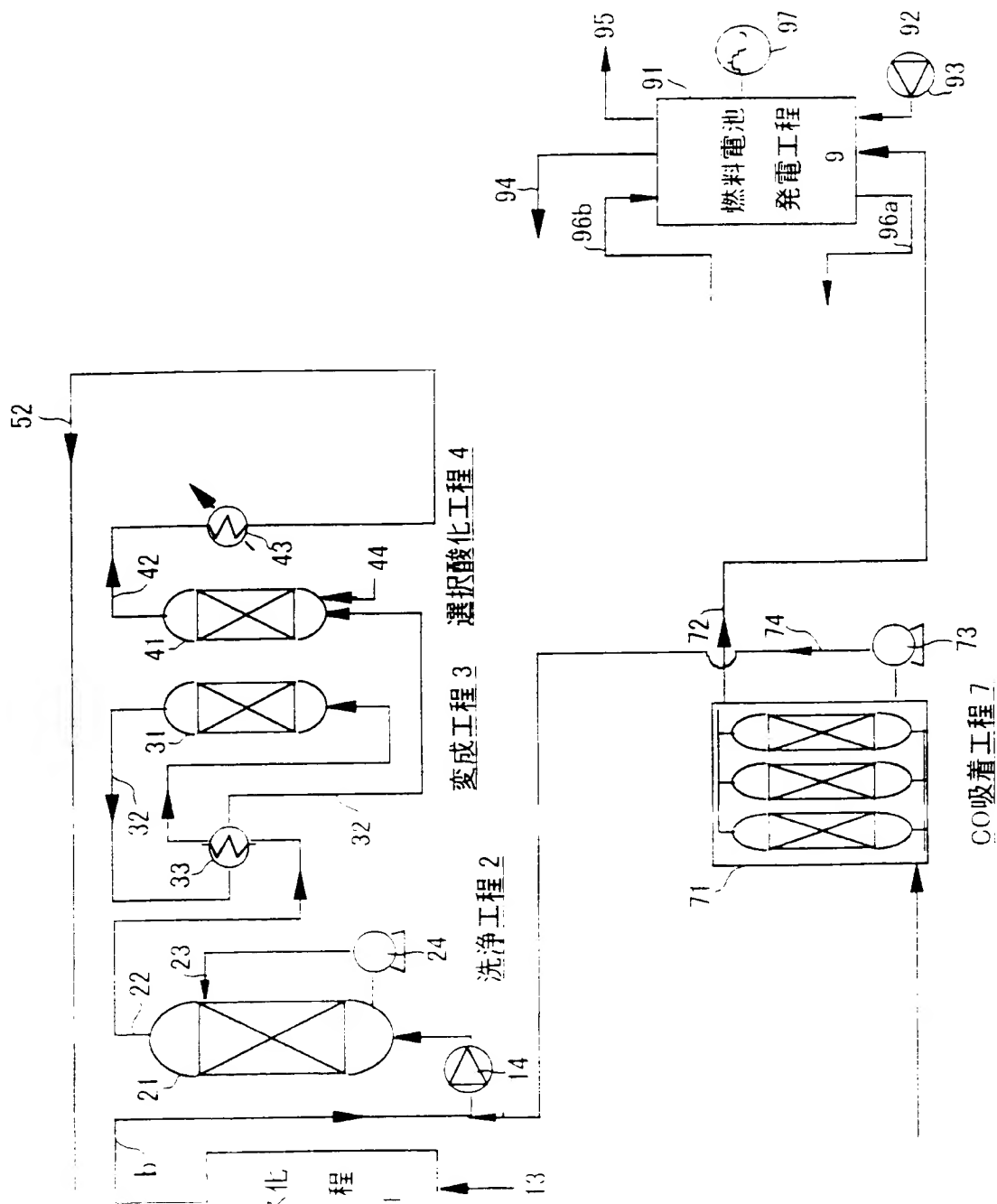






FIG. 7

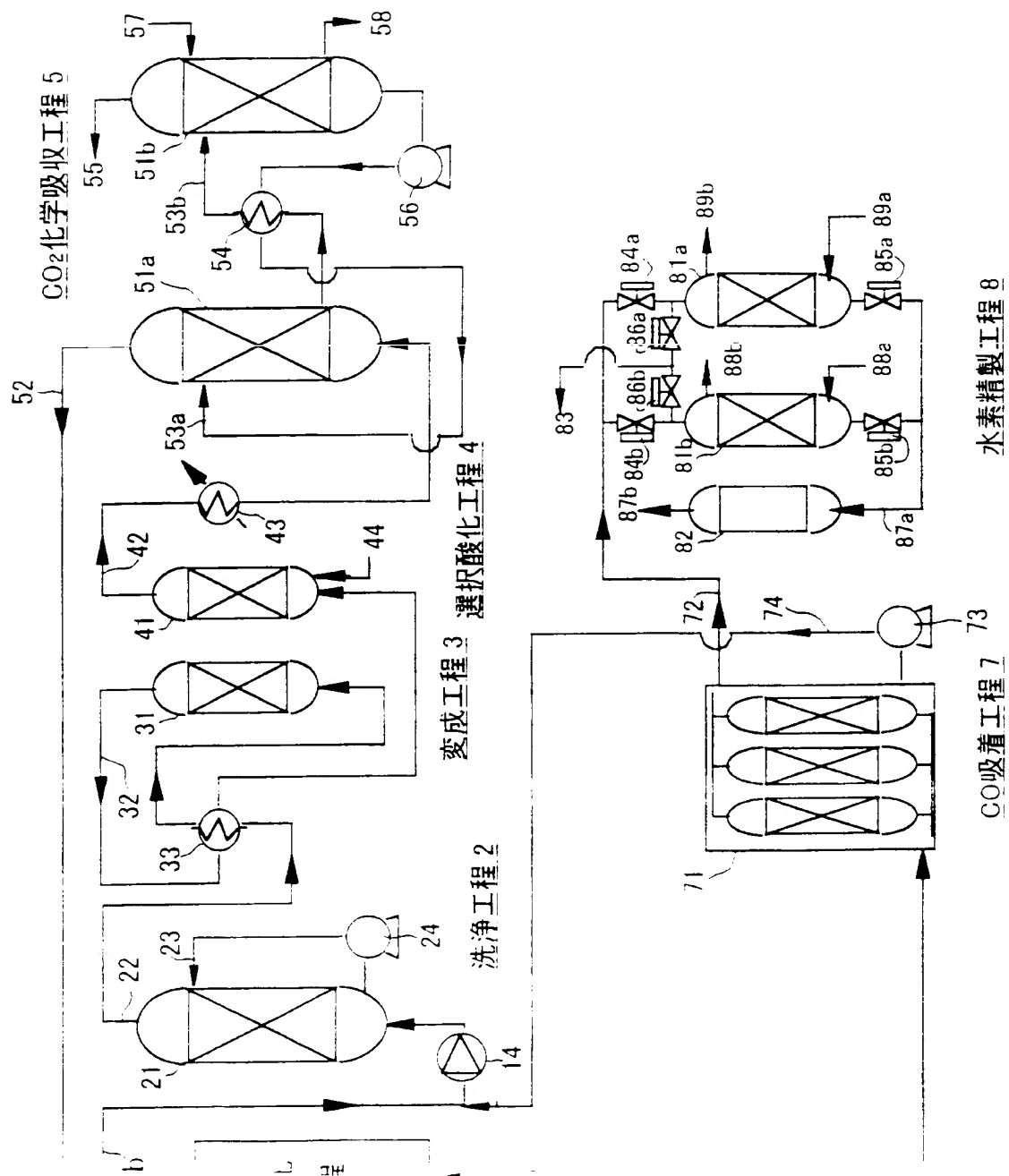
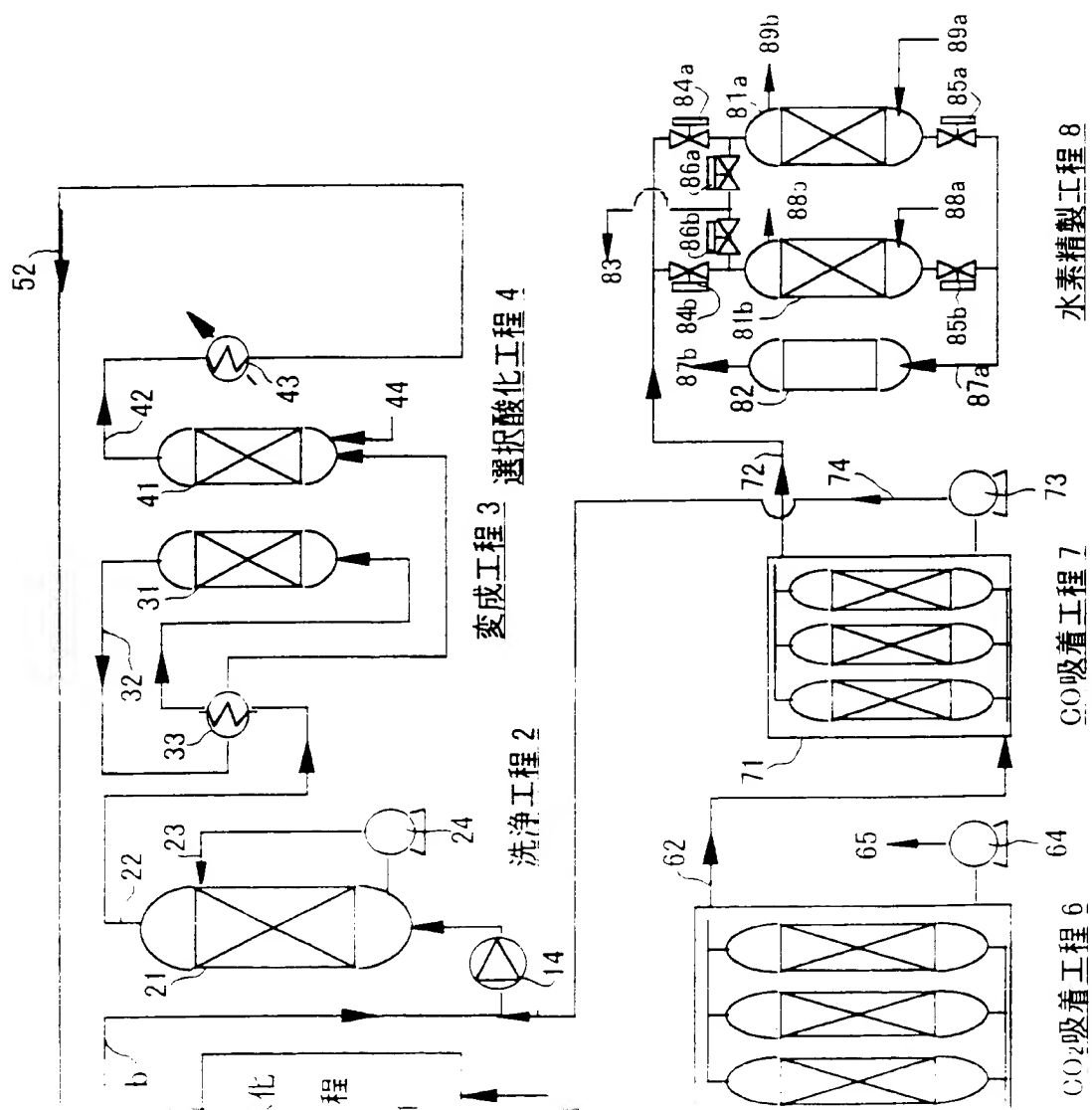




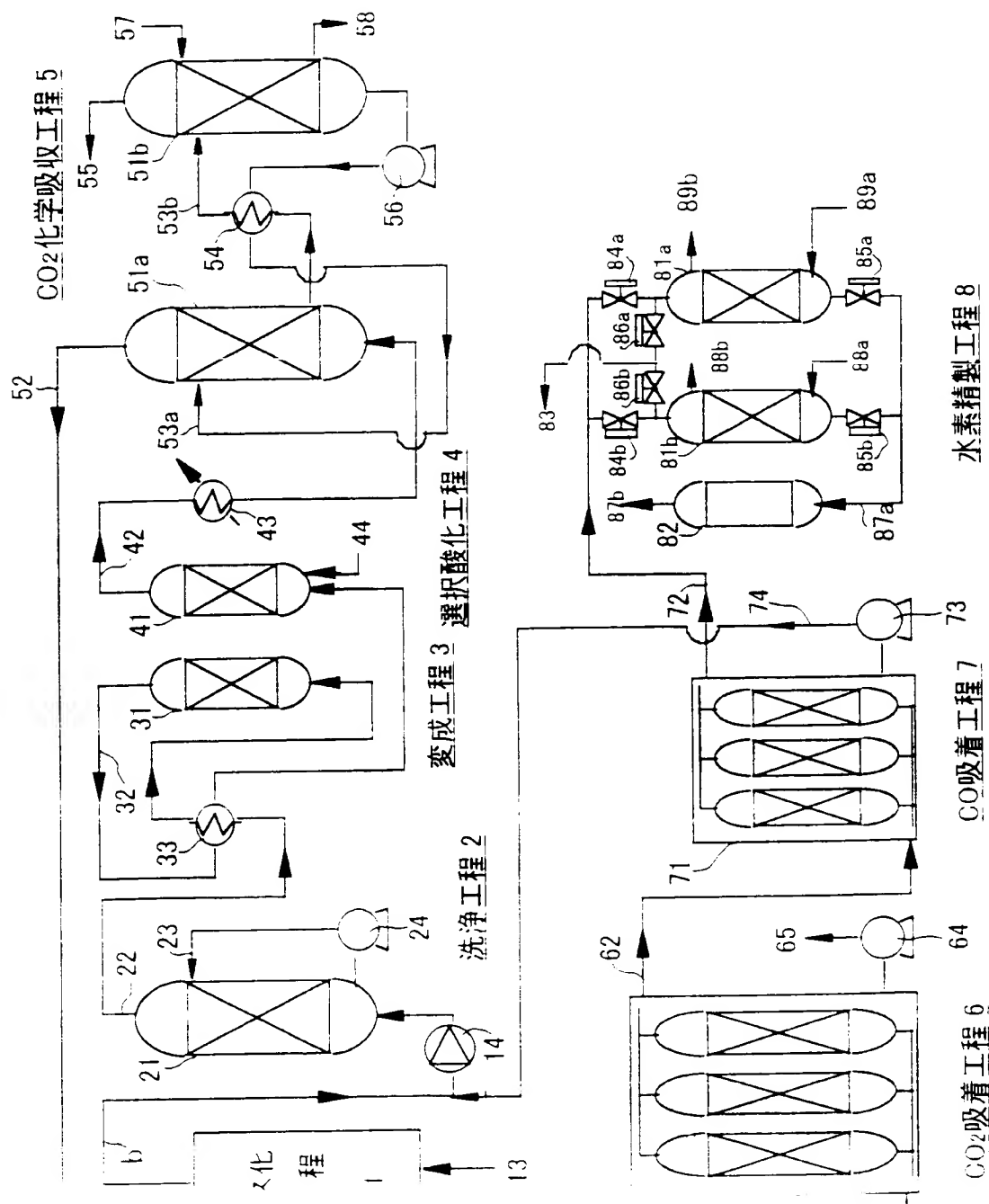
FIG. 8





8/13

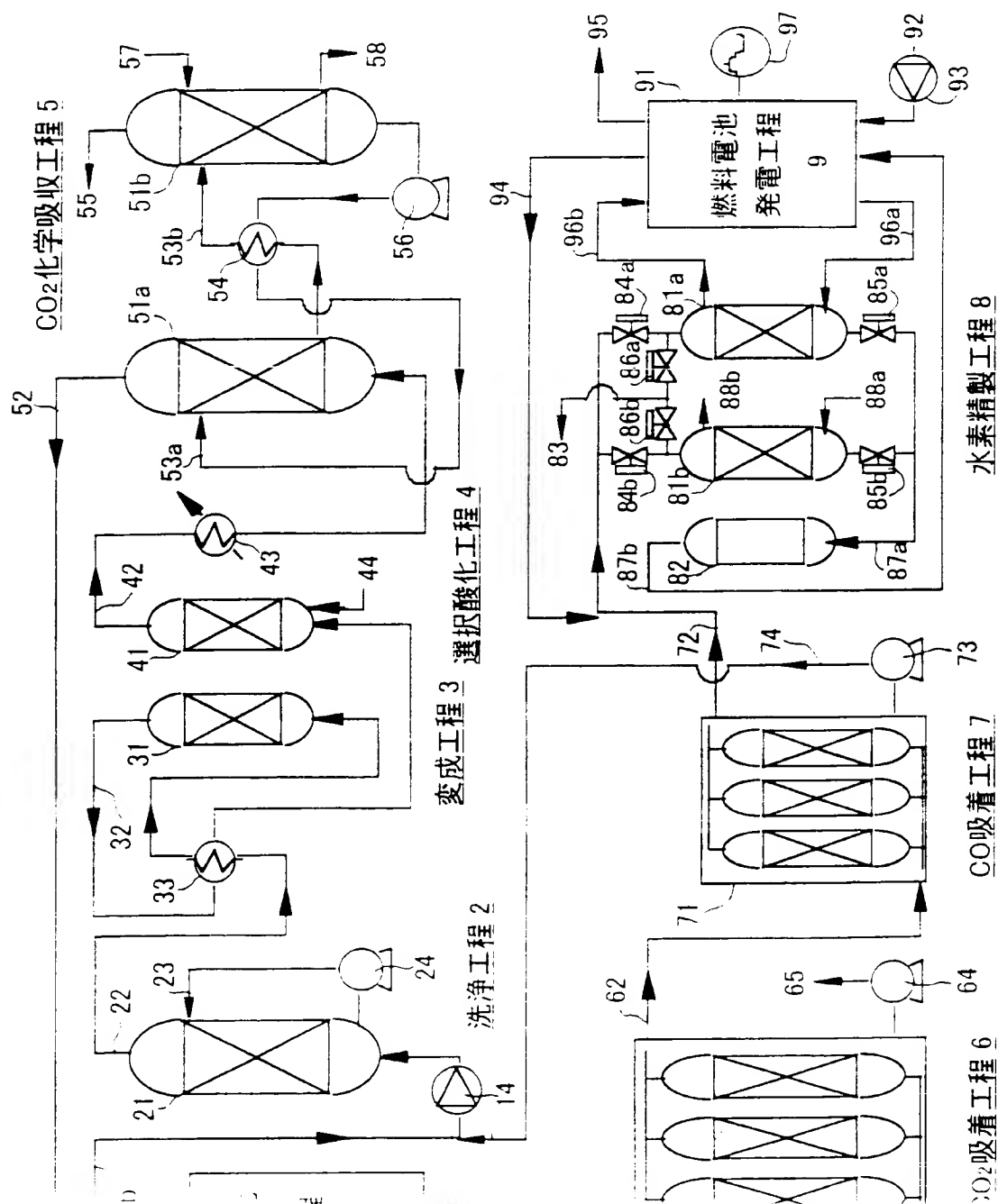
FIG. 9





9/13

FIG. 10

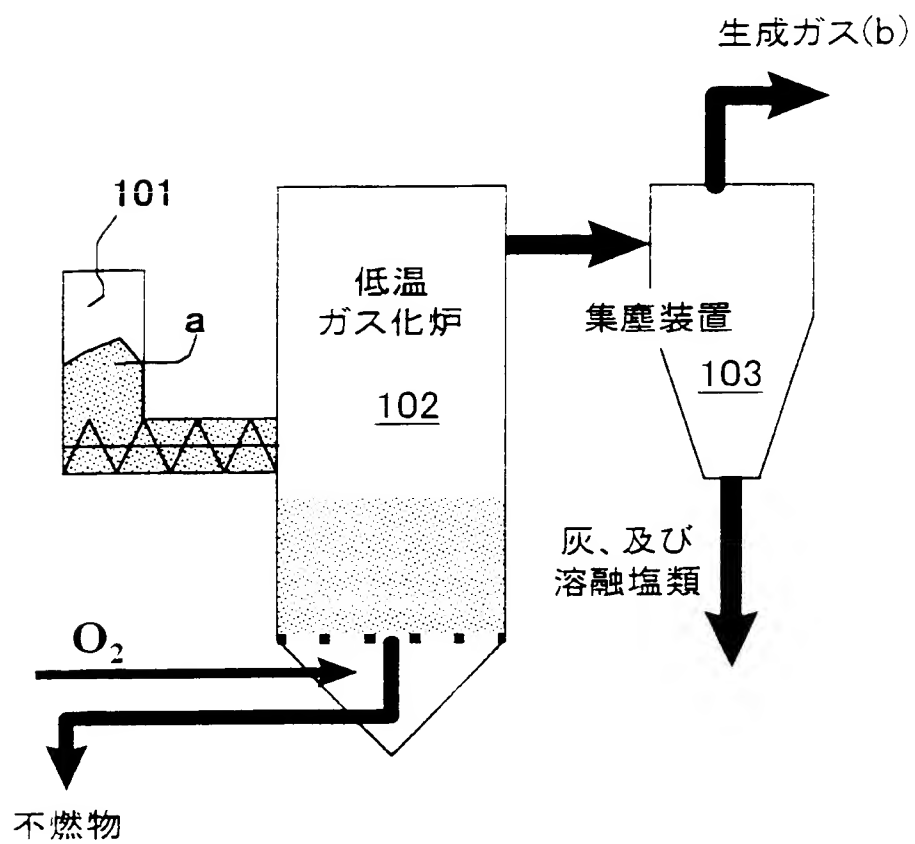






10/13

FIG. 11





11/13

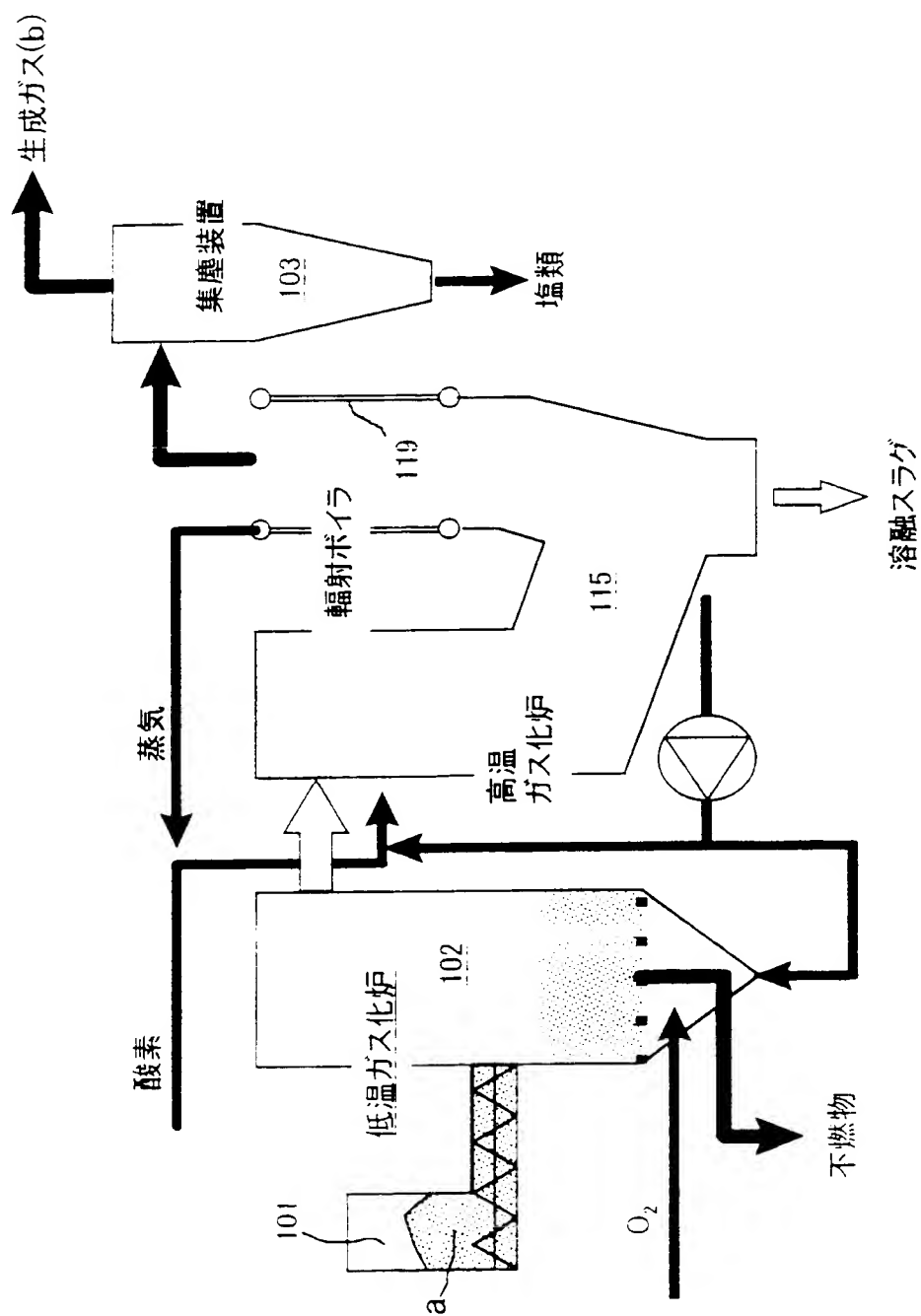
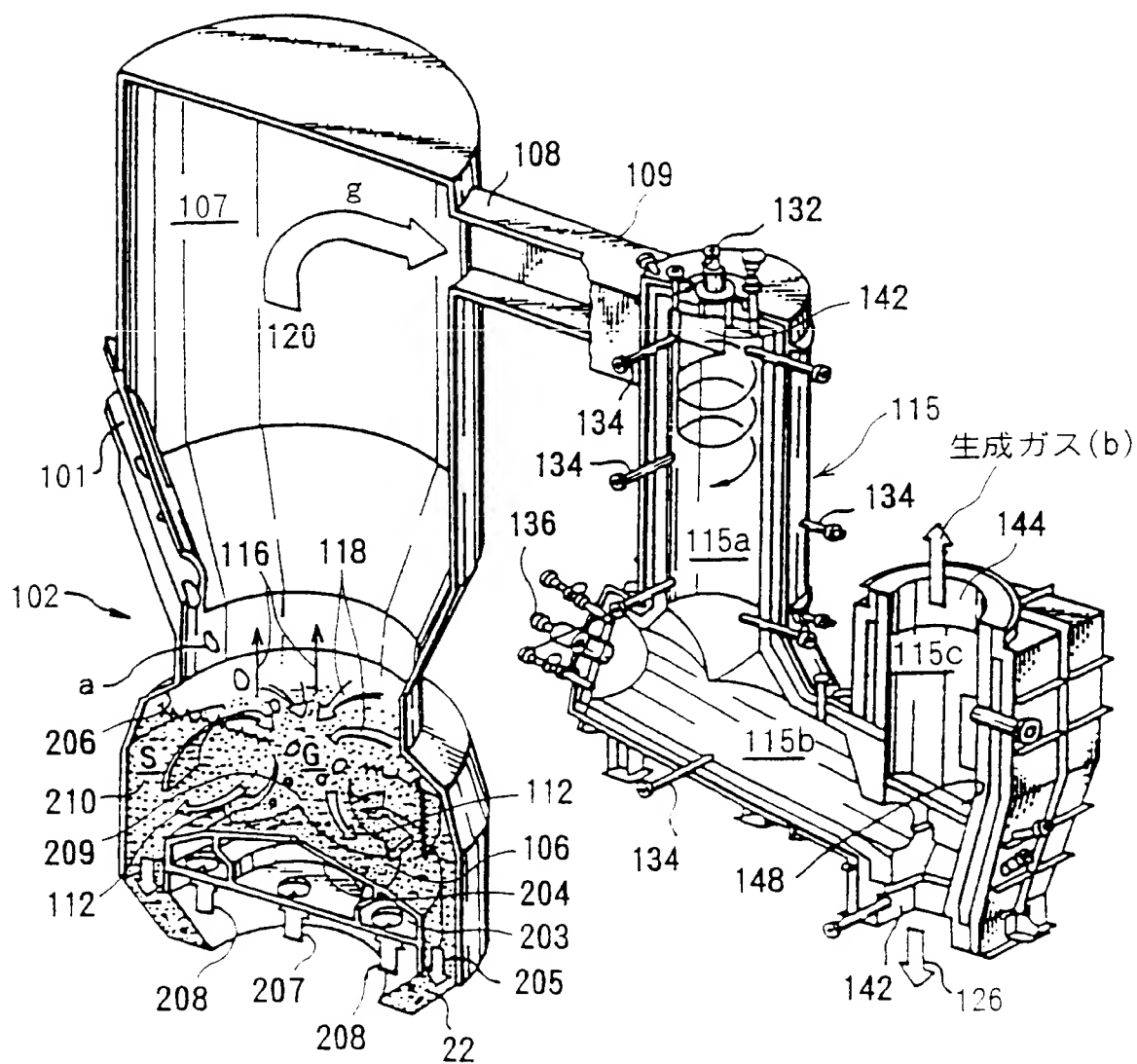


FIG. 12



12/13

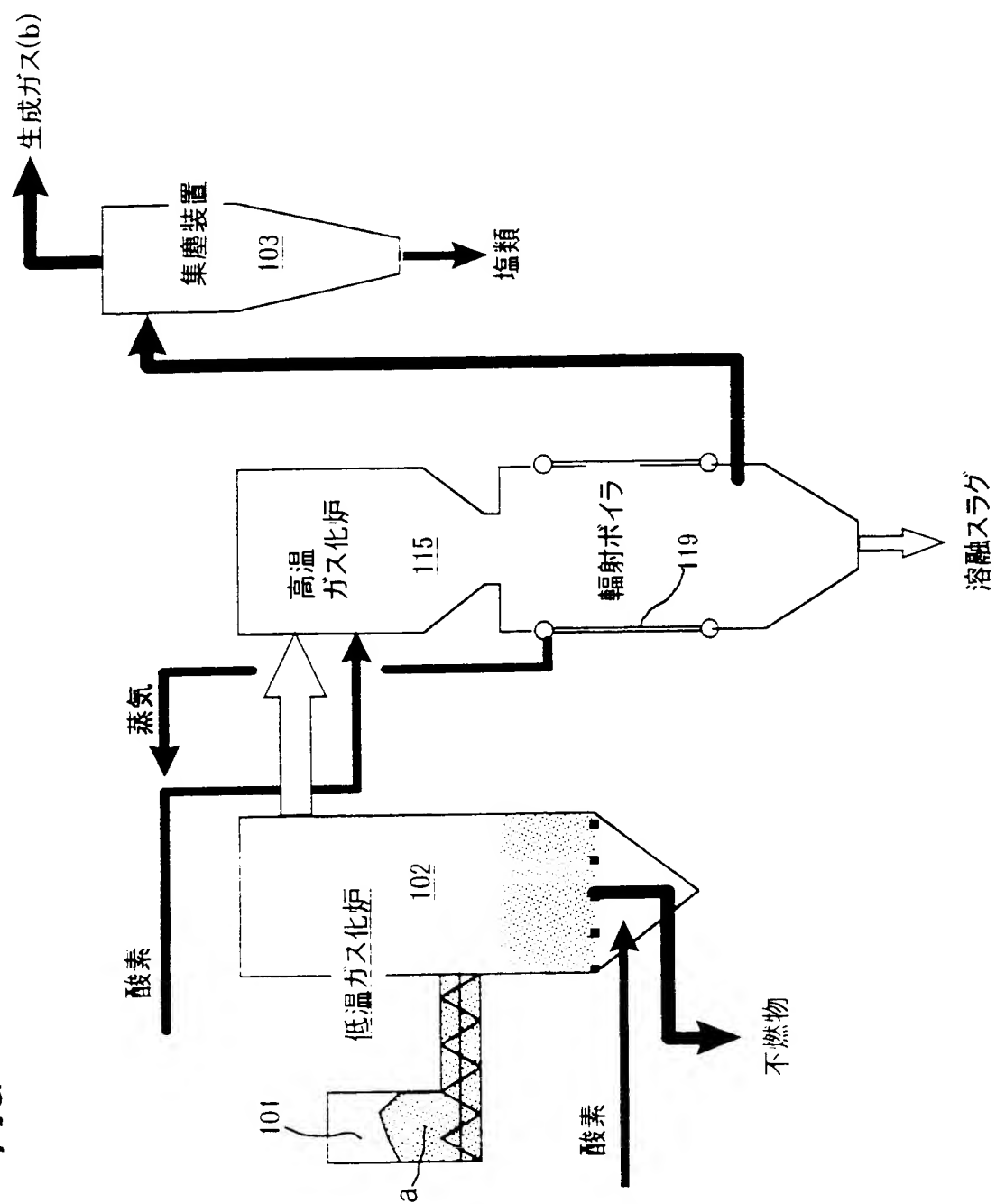
FIG. 13





13/13

FIG. 14







## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/02149

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> C01B3/50, B01D53/14, C10K3/04, C10L3/00, C10J3/00, H01M8/06, H01M8/08, H01M8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> C01B3/50, B01D53/14, C10K3/04, C10L3/00, C10J3/00, H01M8/06, H01M8/08, H01M8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1925-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1969-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	US, 5457250, A (Hoechst Aktiengesellschaft), 10 October, 1995 (10.10.95), Claims; Column 5, line 62 to Column 6, line 27; Figs & JP, 7-197041, A Claims; Par. Nos. [0022] to [0023]; Figs	1, 10 2-9, 11-18
Y	US, 5604047, A (Exxon Research and Engineering Company), 18 February, 1997 (18.02.97) & JP, 9-10538, A	1-18
Y	JP, 59-75987, A (Tsukishima Kikai Co., Ltd. et al.), 28 April, 1984 (28.04.84) (Family: none)	1-18
Y	JP, 3-208801, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 12 September, 1991 (12.09.91) (Family: none)	1-18
Y	JP, 62-278769, A (NKK CORPORATION), 03 December, 1987 (03.12.87) (Family: none)	4, 13
Y	JP, 4-65302, A (Electric Power Development Company Ltd. et al.), 02 March, 1992 (02.03.92) (Family: none)	5, 14

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"I" document which may throw doubts on priority claims or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"P" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/02149

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 60-35730, U (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 12 March, 1985 (12.03.85) (Family: none)	6, 8, 15, 17

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C01B3/50, B01D53/14, C10K3/04, C10L3/00, C10J3/00, H01M8/06, H01M8/08, H01M8/10

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C01B3/50, B01D53/14, C10K3/04, C10L3/00, C10J3/00, H01M8/06, H01M8/08, H01M8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年  
 日本国実用新案登録公報 1969-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WP 1/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	US, 5457250, A, (Hoechst Aktiengesellschaft) 10. 10月. 1995(10. 1	1, 10
Y	0. 95), 特許請求の範囲, 第5欄第62行-第6欄27行, 図面 & JP, 7-197041, A, 特許請求の範囲, [0022]-[0023], 図面	2-9, 11-18
Y	US, 5604047, A, (Exxon Research and Engineering Company) 18. 2月. 1997(18. 02. 97), & JP, 9-10538, A,	1-18
Y	JP, 59-75987, A, (月島機械株式会社外2名) 28. 4月. 1984(28. 04. 84), (ファミリーなし)	1-18

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

- A. 特に関連のある文献ではない、一般的技術事項を示すもの  
 B. 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 C. 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 D. 出願による開示、使用、販売等によって知られる文献

の日の後に公表された文献

- E. 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 F. 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 G. 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの



C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 3-208801, A, (三菱重工業株式会社) 12. 9月. 1991 (12. 09. 91), (ファミリーなし)	1-18
Y	JP, 62-278769, A, (日本鋼管株式会社) 3. 12月. 1987 (03. 12. 87), (ファミリーなし)	4, 13
Y	JP, 4-65302, A, (電源開発株式会社外 1 名) 2 3月. 1992 (02. 03. 92), (ファミリーなし)	5, 14
Y	JP, 60-35730, U, (三菱重工業株式会社) 12. 3月. 1985 (12. 03. 85), (ファミリーなし)	6, 8, 15, 17

E P . U S

P C T

## 国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第40、41条)  
[ P C T 1 8 条、P C T 規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 PEB211	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。		
国際出願番号 PCT/JPO0/02149	国際出願日 (日.月.年) 03.04.00	優先日 (日.月.年) 02.04.99	
出願人(氏名又は名称) 株式会社 荏原製作所			

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 3 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

## 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2 ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3 ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内に



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. : C01B3/50, B01D53/14, C10K3/04, C10L3/00, C10J3/00, H01M8/06, H01M8/08, H01M8/10

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. : C01B3/50, B01D53/14, C10K3/04, C10L3/00, C10J3/00, H01M8/06, H01M8/08, H01M8/10

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1926-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2000年
日本国登録実用新案公報	1994-2000年
日本国実用新案登録公報	1969-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WP 1/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	US, 5457250, A, (Hoechst Aktiengesellschaft) 10. 10月. 1995 (10. 10. 95), 特許請求の範囲, 第5欄第62行-第6欄27行, 図面 & JP, 7-197041, A, 特許請求の範囲, [0022]-[0023], 図面	1, 10 2-9, 11-18
Y	US, 5604047, A, (Exxon Research and Engineering Company) 18. 2月. 1997 (18. 02. 97), & JP, 9-10538, A,	1-18
Y	JP, 59-75987, A, (月島機械株式会社外2名) 28. 4月. 1984 (28. 04. 84), (ファミリーなし)	1-18

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献







C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 3-208801, A, (三菱重工業株式会社) 12. 9月. 1991 (12. 09. 91), (ファミリーなし)	1-18
Y	JP, 62-278769, A, (日本鋼管株式会社) 3. 12月. 1987 (03. 12. 87), (ファミリーなし)	4, 13
Y	JP, 4-65302, A, (電源開発株式会社外 1 名) 2. 3月. 1992 (02. 03. 92), (ファミリーなし)	5, 14
Y	JP, 60-35730, U, (三菱重工業株式会社) 12. 3月. 1985 (12. 03. 85), (ファミリーなし)	6, 8, 15, 17



特許協力条約

発信人 日本国特許庁（国際予備審査機関）



出願人代理人 渡邊 勇 あて名 〒 160-0023 東京都新宿区西新宿7丁目5番8号 GOWA西新宿4階 渡邊・堀田特許事務所	般
--	---

PCT見解書

(法第13条)  
PCT規則66)

発送日  
(日、月、年)

26.12.00

出願人又は代理人 の書類記号	PEB211	応答期間	上記発送日から 2 月/年以内
国際出願番号 PCT/JPO0/02149	国際出願日 (日、月、年) 03.04.00	優先日 (日、月、年) 02.04.99	
国際特許分類 (IPC) Int. Cl. C01B3/50, B01D53/14, C10K3/04, C10L3/00, C10J3/00, H01M8/06, H01M8/08, H01M8/10			
出願人 (氏名又は名称) 株式会社 佳原製作所			

1. これは、この国際予備審査機関が作成した 1 頁目の見解書である。

2. この見解書は、次の内容を含む。

- I ☒ 見解の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解の不作成
- IV ☐ 発明の単一性の欠如
- V ☒ 法第13条（PCT規則66.2(a)(1)）に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☐ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

3. 出願人は、この見解書に回答することが求められる。

いつ？ 上記応答期間を参照すること。この応答期間に間に合わないときは、出願人は、法第13条（PCT規則66.2(a)(1)）に規定するところ、その期間の経過的に国際予備審査機関に期間延長を請求することができ、これを、期間延長が認められる場合は合理的な理由があり、かつ、その延長は主格がある場合に限り、行うことに注意された。

どのように？ 法第13条（PCT規則66.3）の規定に従い、解答書及び必要場合には、補正書を提出する。補正書の形式及び言語については、法施行規則第62条（PCT規則66.8及び66.9）を参照すること。

なお 補正書を提出する追加の機会については、法施行規則第61条の2（PCT規則66.4）を参照すること。補正書及び、又は解答書の審査官による考慮については、PCT規則66.4の2を参照すること。審査官との非公式の連絡については、PCT規則66.6を参照すること。

応答がないときは、国際予備審査報告はこの見解書に基づき作成される。

1. 本報告は、本報告作成後、最終期間（PCT規則66.2(a)(1)）の満了後、2ヶ月以内に、本報告の送付先（PCT規則66.2(a)(1)）に送付される。

本報告は、

本報告は、

本報告は、

本報告は、

1. 本報告は、本報告作成後、最終期間（PCT規則66.2(a)(1)）の満了後、2ヶ月以内に、本報告の送付先（PCT規則66.2(a)(1)）に送付される。

本報告は、

本報告は、



## I. 見解の基礎

1. この見解書は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT 14条)の規定に基づく命令に回答するために提出された差替え用紙は、この見解書において「出願時」とする。)

☒ 出願時の国際出願書類

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT 19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき見解書を作成した。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。  
☐ 書面による配列表に記載した配列と、フレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図、

5. この見解書は、補正欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正はされなかったものとして作成した。(PCT規則90.2(a))



## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第13条(PCT規則66.2(a)(i))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	1-18	有
	請求の範囲		無
進歩性(1S)	請求の範囲		有
	請求の範囲	1-18	無
産業上の利用可能性(1A)	請求の範囲	1-18	有
	請求の範囲		無

## 2. 文献及び説明

文献1:US, 5457250, A, (Hoechst Aktiengesellschaft) 10.10月.1995(10.10.95)

文献2:US, 5604047, A, (Exxon Research and Engineering Company)18.2月.1997  
(18.02.97)

文献3:JP, 59-75987, A, (月島機械株式会社外2名)28.4月.1984(28.04.84)

文献4:JP, 3-208801, A, (三菱重工業株式会社)12.9月.1991(12.09.91)

文献5:JP, 62-278769, A, (日本鋼管株式会社)3.12月.1987(03.12.87)

文献6:JP, 4-65302, A, (電源開発株式会社外1名)2.3月.1992(02.03.92)

文献7:JP, 60-35730, U, (三菱重工業株式会社)12.3月.1985(12.03.85)

文献8:JP, 63-70669, U, (富士電機株式会社)12.5月.1988(12.05.88)

(1) 請求の範囲1、3、10、12に記載された発明は、国際調査報告に引用された文献1により進歩性を有していない。

文献1には、プラスチック廃棄物(可燃物)を部分酸化によりガス化し、得られたガスを洗浄し、シフト変換した後、化学的洗浄及び吸着剤を用いた圧力変動法によって、高純度水素を得る旨が記載されている。文献1には、前記吸着剤により一酸化炭素を除去する点は明記されていないが、圧力変動吸着法により一酸化炭素を除去する方法は良く知られており、高純度水素を得るために、圧力変動吸着法により一酸化炭素も吸着除去することは当業者が容易になし得ることである。

(2) 請求の範囲1、3、7、9、10、12、16、18に記載された発明は、国際調査報告に引用された文献2、3により進歩性を有していない。

文献3には、廃棄物を熱分解によりガス化し、得られたガスを洗浄し、シフト変換して水素含有ガスを得る旨が記載され、該ガスが一酸化炭素を含有し、水素に富むガスであることは当業者にとって自明である。

一方、文献2には、一酸化炭素を含有し、水素に富んだガスから一酸化炭素を除去し、実質的に一酸化炭素のない水素に富んだガス流、より詳しくは、燃料電池に

供給可能なガスを得る旨が記載されており、文献1、3に記載された発明と比べて、文献2には、前記吸着剤を用いた圧力変動法により一酸化炭素を除去する点は明記されていないが、圧力変動吸着法により一酸化炭素を除去する方法は良く知られており、高純度水素を得るために、圧力変動吸着法により一酸化炭素も吸着除去することは当業者が容易になし得ることである。





補充欄（いずれかの欄の大きさが足りない場合に使用すること）

第 V 欄の続き

(3) 請求の範囲1-3、7、9、10-12、16、18に記載された発明は、国際調査報告に引用された文献1、3、4により進歩性を有していない。

文献1、3には、廃棄物をガス化し、洗浄、シフト変性し、水素含有ガスを得る旨が記載されている。

一方、文献4には、合成ガスをシフト変換するのみでは、燃料電池用としては、一酸化炭素が十分に除去されておらず、シフト変換後に一酸化炭素を酸化除去する方法が有効であるが、装置の大型化を防ぐため、現実的には酸化除去後も一酸化炭素が残留する旨が記載され、一酸化炭素を十分に除去するために有効な方法として、一酸化炭素、二酸化炭素、水素を含むガスをシフト変換した後、一酸化炭素を酸化除去し、更に一酸化炭素を吸着除去する実施例が記載されている。

また、燃料電池用の水素ガスを、廃棄物をガス化したものから製造することも良く知られている。

してみれば、文献1、2記載の廃棄物のガス化ガスを燃料電池用として使用するためには、文献4記載の技術と同様にシフト変換後に、一酸化炭素を酸化除去し、更に一酸化炭素を吸着除去することは当業者が容易に想到し得ることである。

(4) 請求の範囲1-5、7、9-14、16、18に記載された発明は、国際調査報告に引用された文献1-6により進歩性を有していない。

一酸化炭素、二酸化炭素、及び水素を含有するガスから、一酸化炭素と二酸化炭素等を除去し高純度の水素を得る方法として、文献5、6記載のような下記a、bの方法が良く知られている。

a. シフト変換（変性）後は、アルカリにより二酸化炭素を吸収除去し、更に吸着法によって、一酸化炭素、二酸化炭素等の水素以外のガスを吸着除去し、高純度水素ガスを得る方法

b. シフト変換後に二酸化炭素を吸着除去し、更に一酸化炭素を吸着除去する方法

してみれば、文献1、3記載の発明において、洗浄後の一酸化炭素、二酸化炭素、及び水素を含有するガスをシフト変換した後は、上記a、b記載の方法を採用して、高純度の水素を得ることは当業者が容易に想到し得ることであり、また、固体高分子型等の燃料電池用に使用する際、水素ガスの純度が高いほど適していることが知られているので、得られた高純度水素を燃料電池用水素として使用することに格別の困難性は認められない。

(5) 請求の範囲6、8、15、17に記載された発明は、国際調査報告に引用された文献1-7及び新たに引用する文献8により進歩性を有していない。

文献8には、水素含有ガスを製造して燃料電池に供給する際、製造したガスを水素貯蔵合金に貯蔵し、水素貯蔵合金から燃料電池に精製水素を供給することが記載されている。また、文献7記載のように、水素貯蔵合金によって、窒素、アルゴン等の不純物も除去できることが良く知られている。

してみれば、文献1-6記載の技術に基づいて製造した高純度水素ガスを、より高純

度にするには、文献8、9、10、11、12、13、14、15、16、17、18、19、20、21、22、23、24、25、26、27、28、29、30、31、32、33、34、35、36、37、38、39、40、41、42、43、44、45、46、47、48、49、50、51、52、53、54、55、56、57、58、59、60、61、62、63、64、65、66、67、68、69、70、71、72、73、74、75、76、77、78、79、80、81、82、83、84、85、86、87、88、89、90、91、92、93、94、95、96、97、98、99、100、101、102、103、104、105、106、107、108、109、110、111、112、113、114、115、116、117、118、119、120、121、122、123、124、125、126、127、128、129、130、131、132、133、134、135、136、137、138、139、140、141、142、143、144、145、146、147、148、149、150、151、152、153、154、155、156、157、158、159、160、161、162、163、164、165、166、167、168、169、170、171、172、173、174、175、176、177、178、179、180、181、182、183、184、185、186、187、188、189、190、191、192、193、194、195、196、197、198、199、200、201、202、203、204、205、206、207、208、209、210、211、212、213、214、215、216、217、218、219、220、221、222、223、224、225、226、227、228、229、230、231、232、233、234、235、236、237、238、239、240、241、242、243、244、245、246、247、248、249、250、251、252、253、254、255、256、257、258、259、260、261、262、263、264、265、266、267、268、269、270、271、272、273、274、275、276、277、278、279、280、281、282、283、284、285、286、287、288、289、290、291、292、293、294、295、296、297、298、299、300、301、302、303、304、305、306、307、308、309、310、311、312、313、314、315、316、317、318、319、320、321、322、323、324、325、326、327、328、329、330、331、332、333、334、335、336、337、338、339、340、341、342、343、344、345、346、347、348、349、350、351、352、353、354、355、356、357、358、359、360、361、362、363、364、365、366、367、368、369、370、371、372、373、374、375、376、377、378、379、380、381、382、383、384、385、386、387、388、389、390、391、392、393、394、395、396、397、398、399、400、401、402、403、404、405、406、407、408、409、410、411、412、413、414、415、416、417、418、419、420、421、422、423、424、425、426、427、428、429、430、431、432、433、434、435、436、437、438、439、440、441、442、443、444、445、446、447、448、449、450、451、452、453、454、455、456、457、458、459、460、461、462、463、464、465、466、467、468、469、470、471、472、473、474、475、476、477、478、479、480、481、482、483、484、485、486、487、488、489、490、491、492、493、494、495、496、497、498、499、500、501、502、503、504、505、506、507、508、509、510、511、512、513、514、515、516、517、518、519、520、521、522、523、524、525、526、527、528、529、530、531、532、533、534、535、536、537、538、539、540、541、542、543、544、545、546、547、548、549、550、551、552、553、554、555、556、557、558、559、560、561、562、563、564、565、566、567、568、569、570、571、572、573、574、575、576、577、578、579、580、581、582、583、584、585、586、587、588、589、590、591、592、593、594、595、596、597、598、599、600、601、602、603、604、605、606、607、608、609、610、611、612、613、614、615、616、617、618、619、620、621、622、623、624、625、626、627、628、629、630、631、632、633、634、635、636、637、638、639、640、641、642、643、644、645、646、647、648、649、650、651、652、653、654、655、656、657、658、659、660、661、662、663、664、665、666、667、668、669、670、671、672、673、674、675、676、677、678、679、680、681、682、683、684、685、686、687、688、689、690、691、692、693、694、695、696、697、698、699、700、701、702、703、704、705、706、707、708、709、710、711、712、713、714、715、716、717、718、719、720、721、722、723、724、725、726、727、728、729、730、731、732、733、734、735、736、737、738、739、740、741、742、743、744、745、746、747、748、749、750、751、752、753、754、755、756、757、758、759、760、761、762、763、764、765、766、767、768、769、770、771、772、773、774、775、776、777、778、779、780、781、782、783、784、785、786、787、788、789、790、791、792、793、794、795、796、797、798、799、800、801、802、803、804、805、806、807、808、809、810、811、812、813、814、815、816、817、818、819、820、821、822、823、824、825、826、827、828、829、830、831、832、833、834、835、836、837、838、839、840、841、842、843、844、845、846、847、848、849、850、851、852、853、854、855、856、857、858、859、860、861、862、863、864、865、866、867、868、869、870、871、872、873、874、875、876、877、878、879、880、881、882、883、884、885、886、887、888、889、890、891、892、893、894、895、896、897、898、899、900、901、902、903、904、905、906、907、908、909、910、911、912、913、914、915、916、917、918、919、920、921、922、923、924、925、926、927、928、929、930、931、932、933、934、935、936、937、938、939、940、941、942、943、944、945、946、947、948、949、950、951、952、953、954、955、956、957、958、959、960、961、962、963、964、965、966、967、968、969、970、971、972、973、974、975、976、977、978、979、980、981、982、983、984、985、986、987、988、989、990、991、992、993、994、995、996、997、998、999、1000、1001、1002、1003、1004、1005、1006、1007、1008、1009、1010、1011、1012、1013、1014、1015、1016、1017、1018、1019、1020、1021、1022、1023、1024、1025、1026、1027、1028、1029、1030、1031、1032、1033、1034、1035、1036、1037、1038、1039、1040、1041、1042、1043、1044、1045、1046、1047、1048、1049、1050、1051、1052、1053、1054、1055、1056、1057、1058、1059、1060、1061、1062、1063、1064、1065、1066、1067、1068、1069、1070、1071、1072、1073、1074、1075、1076、1077、1078、1079、1080、1081、1082、1083、1084、1085、1086、1087、1088、1089、1090、1091、1092、1093、1094、1095、1096、1097、1098、1099、1100、1101、1102、1103、1104、1105、1106、1107、1108、1109、1110、1111、1112、1113、1114、1115、1116、1117、1118、1119、1120、1121、1122、1123、1124、1125、1126、1127、1128、1129、1130、1131、1132、1133、1134、1135、1136、1137、1138、1139、1140、1141、1142、1143、1144、1145、1146、1147、1148、1149、1150、1151、1152、1153、1154、1155、1156、1157、1158、1159、1160、1161、1162、1163、1164、1165、1166、1167、1168、1169、1170、1171、1172、1173、1174、1175、1176、1177、1178、1179、1180、1181、1182、1183、1184、1185、1186、1187、1188、1189、1190、1191、1192、1193、1194、1195、1196、1197、1198、1199、1200、1201、1202、1203、1204、1205、1206、1207、1208、1209、1210、1211、1212、1213、1214、1215、1216、1217、1218、1219、1220、1221、1222、1223、1224、1225、1226、1227、1228、1229、1230、1231、1232、1233、1234、1235、1236、1237、1238、1239、1240、1241、1242、1243、1244、1245、1246、1247、1248、1249、1250、1251、1252、1253、1254、1255、1256、1257、1258、1259、1260、1261、1262、1263、1264、1265、1266、1267、1268、1269、1270、1271、1272、1273、1274、1275、1276、1277、1278、1279、1280、1281、1282、1283、1284、1285、1286、1287、1288、1289、1290、1291、1292、1293、1294、1295、1296、1297、1298、1299、1300、1301、1302、1303、1304、1305、1306、1307、1308、1309、1310、1311、1312、1313、1314、1315、1316、1317、1318、1319、1320、1321、1322、1323、1324、1325、1326、1327、1328、1329、1330、1331、1332、1333、1334、1335、1336、1337、1338、1339、1340、1341、1342、1343、1344、1345、1346、1347、1348、1349、1350、1351、1352、1353、1354、1355、1356、1357、1358、1359、1360、1361、1362、1363、1364、1365、1366、1367、1368、1369、1370、1371、1372、1373、1374、1375、1376、1377、1378、1379、1380、1381、1382、1383、1384、1385、1386、1387、1388、1389、1390、1391、1392、1393、1394、1395、1396、1397、1398、1399、1400、1401、1402、1403、1404、1405、1406、1407、1408、1409、1410、1411、1412、1413、1414、1415、1416、1417、1418、1419、1420、1421、1422、1423、1424、1425、1426、1427、1428、1429、1430、1431、1432、1433、1434、1435、1436、1437、1438、1439、1440、1441、1442、1443、1444、1445、1446、1447、1448、1449、1450、1451、1452、1453、1454、1455、1456、1457、1458、1459、1460、1461、1462、1463、1464、1465、1466、1467、1468、1469、1470、1471、1472、1473、1474、1475、1476、1477、1478、1479、1480、1481、1482、1483、1484、1485、1486、1487、1488、1489、1490、1491、1492、1493、1494、1495、1496、1497、1498、1499、1500、1501、1502、1503、1504、1505、1506、1507、1508、1509、1510、1511、1512、1513、1514、1515、1516、1517、1518、1519、1520、1521、1522、1523、1524、1525、1526、1527、1528、1529、1530、1531、1532、1533、1534、1535、1536、1537、1538、1539、1540、1541、1542、1543、1544、1545、1546、1547、1548、1549、1550、1551、1552、1553、1554、1555、1556、1557、1558、1559、1560、1561、1562、1563、1564、1565、1566、1567、1568、1569、1570、1571、1572、1573、1574、1575、1576、1577、1578、1579、1580、1581、1582、1583、1584、1585、1586、1587、1588、1589、1590、1591、1592、1593、1594、1595、1596、1597、1598、1599、1600、1601、1602、1603、1604、1605、1606、1607、1608、1609、1610、1611、1612、1613、1614、1615、1616、1617、1618、1619、1620、1621、1622、1623、1624、1625、1626、1627、1628、1629、1630、1631、1632、1633、1634、1635、1636、1637、1638、1639、1640、1641、1642、1643、1644、1645、1646、1647、1648、1649、1650、1651、1652、1653、1654、1655、1656、1657、1658、1659、1660、1661、1662、1663、1664、1665、1666、1667、1668、1669、1670、1671、1672、1673、1674、1675、1676、1677、1678、1679、1680、1681、1682、1683、1684、1685、1686、1687、1688、1689、1690、1691、1692、1693、1694、1695、1696、1697、1698、1699、1700、1701、1702、1703、1704、1705、1706、1707、1708、1709、1710、1711、1712、1713、1714、1715、1716、1717、1718、1719、1720、1721、1722、1723、1724、1725、1726、1727、1728、1729、1730、1731、1732、1733、1734、1735、1736、1737、1738、1739、1740、1741、1742、1743、1744、1745、1746、1747、1748、1749、1750、1751、1752、1753、1754、1755、1756、1757、1758、1759、1760、1761、1762、1763、1764、1765、1766、1767、1768、1769、1770、1771、1772、1773、1774、1775、1776、1777、1778、1779、1780、1781、1782、1783、1784、1785、1786、1787、1788、1789、1790、1791、1792、1793、1794、1795、1796、1797、1798、1799、1800、1801、1802、1803、1804、1805、1806、1807、1808、1809、1810、1811、1812、1813、1814、1815、1816、1817、1818、1819、1820、1821、1822、1823、1824、1825、1826、1827、1828、1829、1830、1831、1832、1833、1834、1835、1836、1837、1838、1839、1840、1841、1842、1843、1844、1845、1846、1847、1848、1849、1850、1851、1852、1853、1854、1855、1856、1857、1858、1859、1860、1861、1862、1863、1864、1865、1866、1867、1868、1869、1870、1871、1872、1873、1874、1875、1876、1877、1878、1879、1880、1881、1882、1883、1884、1885、1886、1887、1888、1889、1890、1891、1892、1893、1894、1895、1896、1897、1898、1899、1900、1901、1902、1903、1904、1905、1906、1907、1908、1909、1910、1911、1912、1913、1914、1915、1916、1917、1918、1919、1920、1921、1922、1923、1924、1925、1926、1927、1928、1929、1930、1931、1932、1933、1934、1935、1936、1937、1938、1939、1940、1941、1942、1943、1944、1945、1946、1947、1948、1949、1950、1951、1952、1953、1954、1955、1956、1957、1958、1959、1960、1961、1962、1963、1964、1965、1966、1967、1968、1969、1970、1971、1972、1973、1974、1975、1976、1977、1978、1979、1980、1981、1982、1983、1984、1985、1986、1987、1988、1989、1990、1991、1992、1993、1994、1995、1996、1997、1998、1999、2000、2001、2002、2003、2004、2005、2006、2007、2008、2009、2010、2011、2012、2013、2014、2015、2016、2017、2018、2019、2020、2021、2022、2023、2024、2025、2026、2027、2028、2029、2030、2031、2032、2033、2034、2035、2036、2037、2038、2039、2040、2041、2042、2043、2044、2045、2046、2047、2048、2049、2050、2051、2052、2053、2054、2055、2056、2057、2058、2059、2060、2061、2062、2063、2064、2065、2066、2067、2068、2069、2070、2071、2072、2073、2074、2075、2076、2077、2078、2079、2080、2081、2082、2083、2084、2085、2086、2087、2088、2089、2090、2091、2092、2093、2094、2095、2096、2097、2098、2099、2100、2101、2102、2103、2104、2105、2106、2107、2108、2109、2110、2111、2112、2113、2114、2115、2116、2117、2118、2119、2120、2121、2122、2123、2124、2125、2126、2127、2128、2129、2130、2131、2132、2133、2134、2135、2136、2137、2138、2139、2140、2141、2142、2143、2144、2145、2146、2147、2148、2149、2150、2151、2152、2153、2154、2155、2156、2157、2158、2159、2160、2161、2162、2163、2164、2165、2166、2167、2168、2169、2170、2171、2172、2173、2174、2175、2176、2177、2178、2179、2180、2181、2182、2183、2184、2185、2186、2187、2188、2189、2190、2191、2192、2193、2194、2195、2196、2197、2198、2199、2200、2201、2202、2203、2204、2205、2206、2207、2208、2209、2210、2211、2212、2213、2214、2215、2216、2217、2218、2219、2220、2221、2222、2223、2224、2225、2226、2227、2228、2229、2230、2231、2232、2233、2234、2235、2236、2237、2238、2239、2240、2241、2242、2243、2244、2245、2246、2247、2248、2249、2250、2251、2252、2253、2254、2255、2256、2257、2258、2259、2260、2261、2262、2263、2264、2265、2266、2267、2268、2269、2270、2271、2272、2273、2274、2275、2276、2277、2278、2279、2280、2281、2282、2283、2284、2285、2286、2287、2288、2289、2290、2291、2292、2293、2294、2295、2296、2297、2298、2299、2300、2301、2302、2303、2304、2305、2306、2307、2308、2309、2310、2311、2312、2313、2314、2315、2316、2317、2318、2319、2320、2321、2322、2323、2324、2325、2326、2327、2328、2329、2330、2331、2332、2333、2334、2335、2336、2337、2338、2339、2340、2341、2342、2343、2344、2345、2346、2347、2348、2349、2350、2351、2352、2353、2354、2355、2356、2357、2358、2359、2360、2361、2362、2363、2364、2365、2366、2367、2368、2369、2370、2371、2372、2373、2374、2375、2376、2377、2378、2379、2380、2381、2382、2383、2384、2385、2386、2387、2388、2389、2390、2391、2392、2393、2394、2395、2396、2397、2398、2399、2400、2401、2402、2403、2404、2405、2406、2407、2408、2409、2410、2411、2412、2413、2414、2415、2416、2417、2418、2419、2420、2421、2422、2423、2424、242







## PATENT COOPERATION TREATY

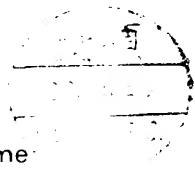
PCT

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:



WATANABE, Isamu  
Gowa Nishi-Shinjuku 4F  
5-8, Nishi-Shinjuku 7-chome  
Shinjuku-ku, Tokyo 160-0023  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 07 June 2000 (07.06.00)	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
Applicant's or agent's file reference PEB211	
International application No. PCT/JP00/02149	
International publication date (day/month/year) Not yet published	
Applicant EBARA CORPORATION et al	International filing date (day/month/year) 03 April 2000 (03.04.00)  Priority date (day/month/year) 02 April 1999 (02.04.99)

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An **asterisk(\*)** appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The **letters "NR"** appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

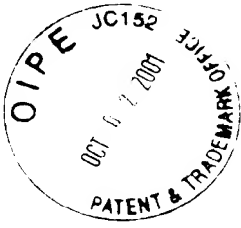
<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
02 April 1999 (02.04.99)	11.96565	JP	26 May 2000 (26.05.00)

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized officer

Marc Salzman





PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE  
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL  
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

WATANABE, Isamu  
Gowa Nishi-Shinjuku 4F  
5-8, Nishi-Shinjuku 7-chome  
Shinjuku-ku, Tokyo 160-0023  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 12 October 2000 (12.10.00)		
Applicant's or agent's file reference PEB211		IMPORTANT NOTICE
International application No. PCT/JP00/02149	International filing date (day/month/year) 03 April 2000 (03.04.00)	
Priority date (day/month/year) 02 April 1999 (02.04.99)		
Applicant EBARA CORPORATION et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

AG,AU,DZ,KP,KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

AE,AL,AM,AP,AT,AZ,BA,BB,BG,BR,BY,CA,CH,CN,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,EA,EE,EP,ES,FI,GB,GD,  
GE,GH,GM,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KZ,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LV,MA,MD,MG,MK,MN,MW,MX,  
NO,NZ,OA,PL,PT,RO,RU,SD,SE,SG,SI,SK,SL,TJ,TM,TR,TT,TZ,UA,UG,UZ,VN,YU,ZA,ZW

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 12 October 2000 (12.10.00) under No. WO 00/59825

## REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

## REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the International Patent Cooperation Treaty, 1978, Chapter II, Article 31(2)(a) and Rule 54.2, and the International Patent Cooperation Treaty, 1978, Chapter II, Article 22 or 39(1).

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Authorized official

J. Zahra





# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/02149

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> C01B3/50, B01D53/14, C10K3/04, C10L3/00, C10J3/00, H01M8/06, H01M8/08, H01M8/10

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> C01B3/50, B01D53/14, C10K3/04, C10L3/00, C10J3/00, H01M8/06, H01M8/08, H01M8/10

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1969-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
WPI/L

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	US, 5457250, A (Hoechst Aktiengesellschaft), 10 October, 1995 (10.10.95), Claims; Column 5, line 62 to Column 6, line 27; Figs & JP, 7-197041, A Claims; Par. Nos. {0022} to {0023}; Figs	1, 10 2-9, 11-18
Y	US, 5604047, A (Exxon Research and Engineering Company), 18 February, 1997 (18.02.97) & JP, 9-10538, A	1-18
Y	JP, 59-75987, A (Tsukishima Kikai Co., Ltd. et al.), 28 April, 1984 (28.04.84) (Family: none)	1-18
Y	JP, 3-208801, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 12 September, 1991 (12.09.91) (Family: none)	1-18
Y	JP, 62-278769, A (NKK CORPORATION), 03 December, 1987 (03.12.87) (Family: none)	4, 13
Y	JP, 4-65302, A (Electric Power Development Company Ltd. et al.), 02 March, 1992 (02.03.92) (Family: none)	5, 14

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
 "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing date  
 "T" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
 "X" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
 "Z" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/02149

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 60-35730, U (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 12 March, 1985 (12.03.85) (Family: none)	6,8,15,17

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C01B3/50, B01D53/14, C10K3/04, C10L3/00, C10J3/00, H01M8/06, H01M8/08, H01M8/10

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl. C01B3/50, B01D53/14, C10K3/04, C10L3/00, C10J3/00, H01M8/06, H01M8/08, H01M8/10

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年  
 日本国実用新案登録公報 1969-2000年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WP 1/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	US, 5457250, A, (Hoechst Aktiengesellschaft) 10. 10月. 1995 (10. 1 0. 95), 特許請求の範囲, 第5欄第62行-第6欄27行, 図面 & JP, 7-197041, A, 特許請求の範囲, [0022]-[0023], 図面	1, 10 2-9, 11-18
Y	US, 5604047, A, (Exxon Research and Engineering Company) 18. 2月. 1997 (18. 02. 97), & JP, 9-10538, A,	1-18
Y	JP, 59-75987, A, (月島機械株式会社外2名) 28. 4月. 1984 (28. 04. 84), (要約なし)	1-18

☒ 上記の続きにも文献が列挙されている。☐ シートファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

- A. 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 B. 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 C. 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 D. 出願による開示、使用、展示等に関する文献

## の日の後に公表された文献

- E. 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって、出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 X. 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 Y. 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの



C (続き) 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 3-208801, A, (三菱重工業株式会社) 12. 9月. 1991 (12. 09. 91), (ファミリーなし)	1-18
Y	JP, 62-278769, A, (日本鋼管株式会社) 3. 12月. 1987 (03. 12. 87), (ファミリーなし)	4, 13
Y	JP, 1-65302, A, (電源開発株式会社外 1 名) 2. 3月. 1992 (02. 03. 92), (ファミリーなし)	5, 14
Y	JP, 60-35730, U, (三菱重工業株式会社) 12. 3月. 1985 (12. 03. 85), (ファミリーなし)	6, 8, 15, 17